

Variabilität der Eiskeimkonzentration über Zentraleuropa

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades

der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich 11

Geowissenschaften / Geographie

der Johann Wolfgang Goethe - Universität

in Frankfurt am Main

von

Dipl. Met. Holger Klein

aus Neuss

Frankfurt (2010)

(D 30)

vom Fachbereich Geowissenschaften / Geographie
der Johann Wolfgang Goethe - Universität als Dissertation angenommen.

Dekan: Prof. Dr. Robert Pütz

Gutachter: Prof. Dr. Ulrich Schmidt (Universität Frankfurt, pensioniert)
Prof. Dr. Joachim Curtius (Universität Frankfurt)

Datum der Disputation : 4. Mai 2011

*“Om maam pum imjya
Kothbiro
Ke luru do ketaa-lha
Om maam pum imjya
Kothbiro
Ke luru do ketaa-lha ...”*

*(“Auma do you hear what I say
The rain is on it's way
Return our cattle home...”)*

*(Mbarek Achieng / Ayub Ogada)
Kenya (trad)*

Inhaltsverzeichnis

| | |
|---|-----------|
| Überblick..... | 1 |
| Abstract..... | 3 |
| 1 Einleitung..... | 5 |
| 1.1 Motivation | 5 |
| 1.2 Hinweise zu den Publikationen | 6 |
| 1.3 Inhaltsangaben (Publikationen)..... | 7 |
| 1.4 Inhaltsangabe (ergänzendes Kapitel) | 9 |
| 1.5 Einführung in die Thematik | 10 |
| 1.2.1 Rolle des Aerosols bei der Wolken und Niederschlagsbildung..... | 10 |
| 2 Variabilität der Eiskeimkonzentration in Mitteleuropa..... | 16 |
| 2.1 Einleitung | 16 |
| 2.2 Messung der atmosphärischen Eiskeimkonzentration | 18 |
| 2.2.1 Wahl der Messstation (Kleiner Feldberg/Taunus)..... | 18 |
| 2.2.2 Charakterisierung des Aerosols | 19 |
| 2.2.3 Probenahme am Taunusobservatorium | 22 |
| 2.3 Interpretation der Messergebnisse..... | 24 |
| 2.3.1 Zeitreihe der IN-Konzentration..... | 24 |
| 2.3.2 lokaler und regionaler Einfluss..... | 28 |
| 2.3.3 Wochengang der Eiskeimkonzentration / Anthropogener Einfluss..... | 32 |
| 2.4 Jahresgang der Eiskeimkonzentration / Ferntransport | 36 |
| 2.5 Mineralstaub..... | 41 |
| 2.5.1 Eiskeimfähigkeit | 41 |
| 2.5.2 Einfluss auf Niederschlag..... | 41 |
| 2.5.3 Quellgebiete | 42 |
| 2.5.4 Ferntransport | 43 |
| (a) Direkter Transportweg nach Europa (Mittelmeer) | 43 |
| (b) Transport von Saharastaub auf den Atlantik | 43 |
| (c) Indirekter Transport nach Europa..... | 47 |
| 2.5.5 Dust outbreaks von Bodélé..... | 48 |
| 2.5.6 Transport von Saharastaub, Wasserdampftransport | 49 |
| 2.6 Jahresgang und Transportwege | 50 |

| | |
|--|------------|
| 2.7 weitere Aerosolkomponenten..... | 50 |
| 2.7.1 Komponentenanalyse | 52 |
| 2.7.2 Primäre Biologische Aerosol Partikel | 58 |
| 2.8 Aktivierungsspektrum im Jahresmittel..... | 59 |
| 2.8 räumliche Repräsentativität in Mitteleuropa | 61 |
| 2.9 Zeitreihenverlauf und Telekonnektion - Indizes | 67 |
| 2.9.1 Atlantische Multidekaden-Oszillation | 68 |
| 2.10 Indikatoren | 70 |
| 2.10.1 Wetterlagenklassifikationen | 70 |
| 2.10.2 Rückwärtstrajektorienklassen | 73 |
| 2.10.3 Partikelgrößenklassen..... | 74 |
| 2.10.4 Aerosol Optische Dicke für Mineralstaub..... | 78 |
| 2.11 Eiskeimverteilung über Europa | 80 |
| 2.12 Ergebnis & Fazit..... | 87 |
| 2.13 Ausblick | 89 |
| 2.14. Anhang | 91 |
| 2.15. Literaturverzeichnis..... | 95 |
| 2.16. Verzeichnis externer Datenquellen | 104 |
| 2.17. Abkürzungsverzeichnis | 108 |
| 3 The Fast Ice Nucleus Chamber FINCH (Bundke et al., 2008)..... | 113 |
| Abstract | J-180 |
| 1 Introduction | J-180 |
| 2 Methods..... | J-181 |
| 2.1 FINCH principle of operation..... | J-181 |
| 2.2 Benefits of the mixing principle..... | J-181 |
| 2.3 FINCH: fluid mechanic characterization | J-181 |
| 2.4 FINCH: detection of ice nuclei and droplets | J-182 |
| 2.5 The FRankfurt Ice Deposition freezinG Experiment: FRIDGE..... | J-184 |
| 3 Results and discussion..... | J-185 |
| 3.1 First Measurements during CLACE 6..... | J-185 |
| 3.2 Laboratory measurements..... | J-185 |
| 3.3 Conclusion and outlook..... | J-185 |
| Acknowledgements | J-186 |
| References | J-186 |

4 A new method for sampling atmospheric ice nuclei with subsequent analysis in a static diffusion chamber (Klein et al., 2009) 121

| | |
|--|--------------|
| Abstract | J-218 |
| 1 Introduction | J-218 |
| 2 Experimental | J-219 |
| 2.1 <i>The detection of ice nuclei in the static vapour diffusion chamber FRIDGE..</i> | <i>J-219</i> |
| 2.2 <i>The electrostatic collection of ice nuclei.....</i> | <i>J-220</i> |
| 3 Results and discussion..... | J-221 |
| 3.1 <i>Evaluation of ice nucleus measurements by the EAC/FRIDGE.....</i> | <i>J-221</i> |
| 3.2 <i>Reevaluation of the filter method</i> | <i>J-222</i> |
| 4 Summary | J-223 |
| Acknowledgements | J-224 |
| References: | J-224 |

5 Saharan Dust And Ice Nuclei Over Central Europe (Klein et al., 2010)..... 129

| | |
|--|----------------|
| Abstract | J-10211 |
| 1 Introduction | J-10211 |
| 2 Methods | J-10212 |
| 2.1 <i>Measurements of ice nuclei and of aerosol physical properties</i> | <i>J-10212</i> |
| 2.2 <i>Modeling the dust transport</i> | <i>J-10213</i> |
| 3 Results | J-10214 |
| 3.1 <i>The Sahara dust episode of May 2008</i> | <i>J-10214</i> |
| 3.2 <i>Ice nuclei observations.....</i> | <i>J-10216</i> |
| 4 Summary and conclusion | J-10218 |
| Acknowledgements | J-10219 |
| References | J-10219 |

Überblick

Das Ziel der vorliegenden Dissertation, die als Forschungsarbeit im Sonderforschungsbereichs SFB 641 „troposphärische Eisphase“ durchgeführt wurde, bestand darin, die Konzentrationen und die Verteilung atmosphärischer Eiskeime (*Ice-Nuclei*, IN) in den Luftmassen Mitteleuropas zu erforschen.

Im Rahmen der Arbeit wurde ein entsprechendes Messverfahren entwickelt - ausgehend von dem Prinzip der statischen Vakuumdiffusionskammer und eine zwei-jährige Zeitreihe atmosphärischer Eiskeimkonzentrationen am Kleinen Feldberg im Taunus (Rhein/Main-Gebiet) aufgenommen.

Die Analyse der Messergebnisse bestätigt in mehrfacher Hinsicht Resultate vorangegangener Studien, die eine herausragende Eiskeim-Eigenschaft von Wüsten-Mineralstaub nachgewiesen haben (z.B. DeMott, 2003). Darüber hinaus präsentiert die vorliegende Arbeit quantitative Abschätzungen des Einflusses von Aerosoleigenschaften, der Luftmassenherkunft und weiterer Indikatoren auf die lokale IN-Konzentration.

In diesem Zusammenhang wird gezeigt, dass die Aerosol optische Dicke von Mineralstaub (AOD_{Dust}) gute Voraussetzungen dazu besitzt, als ein Proxy (engl.: *proxy* = "Stellvertreter", indirekter Anzeiger) für die Eiskeimkonzentration der jeweiligen Luftmasse verwendet zu werden. Eine Grundlage dafür bilden Korrelationsanalysen anhand zeitnaher Sonnenphotometermessungen der benachbarten AERONET-Station Mainz (räumliche Distanz ~30 km). (*AERosol RObotic NETwork* – weltweites Netzwerk für Sonnenphotometer-Messungen).

Der Jahresgang der IN-Konzentrationen am Kleinen Feldberg ist von einer markanten Saisonalität geprägt. Entsprechend weist der Jahresgang von AOD_{Dust} einen vergleichbaren Verlauf für die untersuchte Region auf. Die Monatsmittelwerte beider Größen sind stark korreliert.

Der Vergleich zu einem mittleren Jahresgang von AOD_{Dust} für Zentraleuropa zeigt, dass der gewählte Messstandort in Bezug auf diese Untersuchung als repräsentativ für Zentraleuropa betrachtet werden kann.

Dazu wurden mehrjährige Messdaten von zehn europäischen AERONET-Stationen verwendet.

Unter der Voraussetzung, dass AOD_{Dust} auch für weitere Regionen Europas als übergeordneter Proxy verwendet werden kann, haben die saisonalen Unterschiede in den gemessenen IN-Konzentrationen so eine überregionale Bedeutung.

Eine Saisonalität in der Eiskeim-Konzentrationen, bei der wie am Kleinen Feldberg die Werte im Frühsommer gegenüber den Werten im Winter im Bereich um eine Größenordnung erhöht sind, hätte einen signifikanten Einfluss auf den Prozess der primären Eisbildung in Mischwolken und somit auf die Niederschlagsbildung in Zentraleuropa.

In der vorliegenden Arbeit wird neben dem Mineralstaubanteil auch der Einfluss weiterer Aerosolkomponenten auf die atmosphärische Eiskeimkonzentration diskutiert. Bei einer elektronenmikroskopischen Untersuchung von Aerosolpartikeln, die als IN wirksam waren, wurden in einzelnen Proben der Zeitreihe neben Mineralstaub auch z.B. biologische Komponenten gefunden. (Diese Analysen wurden von den Projektpartnern der Arbeitsgruppe Umweltmineralogie an der Technischen Universität Darmstadt durchgeführt.)

Ein möglicher lokaler Einfluss auf die Messergebnisse wurde untersucht, ist jedoch zumindest bei der gewählten Messstation bezüglich der Eiskeime gegenüber dem Mineralstaub-Ferntransport untergeordnet.

Zur Überprüfung eines anthropogenen Einflusses auf die IN-Konzentration wurde der mittlere Wochengang untersucht. Es konnte für zwei Wochentage ein signifikanter Unterschied der Mittelwerte festgestellt werden. Dies ist jedoch nicht ausreichend, um einen anthropogenen Einfluss sicher zu folgern.

Für ein markantes Saharastaub-Ereignis im Mai 2008 folgt der an der Station Kleiner Feldberg gemessene IN-Konzentrationsverlauf mit deutlich signifikanter Korrelation dem Verlauf der modellierter Mineralstaub-Massenkonzentrationen.

In der vorliegenden Arbeit wird basierend auf der Korrelation zu dem Proxy AOD_{Dust} eine erste Abschätzung der mittleren Eiskeimkonzentration in 4,3 km Höhe über Europa präsentiert.

Dies ist als ein exemplarischer erster Schritt einzuordnen - auf dem Weg zu einer detaillierten Eiskeim-Prognose für Europa.

Abstract

The main focus of this work, which has been realised within the framework of the collaborative research centre (SFB) 641 “the Tropospheric Ice Phase”), was to gain further knowledge about the concentrations and distribution of atmospheric ice-nuclei (IN) in the air-masses above Central Europe.

As a basis for this research an appropriate measuring-system in the form of a static vacuum diffusion chamber was developed and tested. With this equipment a data-record of two years of atmospheric ice nuclei concentrations was kept at Mount Kleiner Feldberg (Rhein-Main Area / Germany).

The analysis of our data confirms the results of other authors in previous studies about the excellent ice-nucleation ability of desert-dust aerosol (e.g. DeMott, 2003).

In addition, the present work gives first empirical estimations of the relationship between ice nuclei and aerosol properties, origin of air-masses and further indicators of IN number concentrations.

Based on the measurements of this study the aerosol optical thickness of mineral dust (AOD_{Dust}) turned out to be an especially important proxy for the IN-concentrations. This is based on a correlation analysis using sun photometer measurements of the AERONET-station (*AERosol RObotic NETwork*) in Mainz (distance to Kleiner Feldberg ~30 km).

From the analysis of the data-record in different seasons of the year, a dominant yearly cycle can be found in the IN-concentrations, as well as in the regional abundance of mineral dust (represented by AOD_{Dust}). The monthly means of both quantities show a strong correlation.

Comparison to an averaged yearly cycle of AOD_{Dust} for central Europe (calculated using data from ten AERONET stations) shows, that the measurement station can be looked upon as representative.

Assuming that the finding that AOD_{Dust} is the dominant proxy for the IN-concentration turns out to be true also for other European regions, the measured seasonal variation of the IN-concentration would have a supra-regional relevancy. The differences in the monthly mean concentrations of IN of about one order of magnitude with high values in early summer and low values in winter could therefore have a significant effect on primary ice formation in mixed phased clouds and the development of precipitation over large areas of Central Europe.

The ice-nucleating ability of other components of aerosol (besides mineral dust) is also discussed in a chapter of this thesis. For single samples, the element analysis of aerosol particles that acted as IN has shown some significant biological fraction in addition to mineral dust.

(this analysis was done by the project partners of the working group ‘environmental mineralogy’ at the Technische Universität Darmstadt)

The possibility of a dominant local influence on the results from the surrounding area of the measuring site was investigated but was found to be subordinate with regard to ice nuclei concentrations. The results of the present work imply, that measured IN concentrations at Kleiner Feldberg are dominated by long range transport of mineral dust.

In addition to the monthly means, the weekly cycle of the IN measurements was also examined in order to look for an anthropogenic influence. For two days of the week a significant difference from the average value was detected. But this single result is not sufficient to conclude an anthropogenic influence with certainty.

For the period of a strong Saharan dust-event over Europe in May 2008 the measured IN-concentrations at Mount Kleiner Feldberg were shown to be highly correlated with modelled dust-concentrations.

This thesis also presents a first estimation of the average IN concentration at 4,3 km height over central Europe based on the correlation between IN and AOD_{Dust} . This should be looked upon as a first step towards achieving a more detailed picture of the IN distribution over Europe.

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Motivation

Am 1. Juli 2004 wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) an der Johann Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt und an der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz der Sonderforschungsbereich (SFB) 641 zur Untersuchung der „troposphärischen Eisphase“ eingerichtet.

Ein wichtiges Ziel des SFB 641 war die Erforschung der vielfältigen, komplexen, physikalischen und chemischen Prozesse, die innerhalb der vereisten Wolken ablaufen. Dies ist einerseits erforderlich, um die Vorgänge vom Prinzip her zu verstehen und andererseits Grundlagen für mögliche Verbesserungen der Vorhersagen des Niederschlags zu schaffen.

Der überwiegende Teil des Niederschlags in Mitteleuropa durchläuft bei seiner Entstehung die Eisphase. Durch den Bergeron-Findeisen Prozess wird das Anwachsen der Eispartikel dabei bezogen auf flüssige Tröpfchen begünstigt.

In der Atmosphäre entstehen sowohl Wolkentropfen als auch Eisteilchen an vorhandenen Aerosolpartikeln. Feste Aerosolpartikel, die aufgrund ihrer Oberflächenbeschaffenheit bei Temperaturen unterhalb von 0°C und Wasserdampfübersättigung als Kristallisationskeim für die Eisbildung dienen können werden als Eiskeime (ice nuclei, IN) bezeichnet. Dabei besitzt nur ein sehr kleiner, variabler Teil aller Aerosolpartikel in der Atmosphäre diese Eigenschaft. Deshalb stellt sich die Frage nach der Konzentration und der entsprechenden Nukleationstemperatur von Eiskeimen in einer gegebenen Situation in der Atmosphäre. Damit direkt verbunden ist die Frage, ob diese grundlegenden Größen vorhersagbar sind. Im nachfolgenden Schritt schließt sich die Frage an, auf welche Weise dann eine Prognose praktisch realisierbar ist.

In mehreren Teilprojekten des Sonderforschungsbereichs wurde daher das Ziel definiert, Messungen der Eiskeimfähigkeit atmosphärischen Aerosols durchzuführen und die Verteilung solcher eisbildenden Partikel in der Troposphäre zu untersuchen. Grundlage für diese Forschung war auch die Entwicklung von zuverlässigen Eiskeim-Messgeräten.

Die vorliegende Arbeit entstand im Rahmen des Teilprojektes A2 und umfasst eine Untersuchung der Variabilität atmosphärischer Eiskeimkonzentration in Luftmassen Mitteleuropas.

Der Kern der vorliegenden kumulativen Promotionsarbeit besteht aus drei Veröffentlichungen, die Ergebnisse zu dieser Fragestellung präsentieren, und zusätzlich die Entwicklung des SFB-Teilprojektes und der verwendeten Messtechnik dokumentieren.

Darüber hinaus ist zu Beginn der Arbeit ein zusätzliches Kapitel beigelegt, das bislang unveröffentlichte Ergebnisse der Eiskeimmessungen am kleinen Feldberg über den Zeitraum 2008 / 2009 präsentiert, mit anderen Datensätzen vergleicht und Ansätze für eine Parametrisierung der Eiskeimkonzentration über Mitteleuropa aufzeigt. In diesem Kapitel, das thematisch eng mit den Veröffentlichungen zusammenhängt, wird häufig Bezug auf die drei Veröffentlichungen genommen, die dort in dem Schriftformat fett, kursiv zitiert werden; in folgender Form: **[Klein et al., 2009]** (Kapitel 4) (Die ergänzende Kapitelangabe bezieht sich dabei auf die Einordnung der Publikation in die vorliegende Arbeit)

1.2 Hinweise zu den Publikationen

Die Publikationen der vorliegenden kumulativen Promotion unterteilen sich in zwei Veröffentlichungen als Erstautor [*Klein et al., 2009*], [*Klein et al., 2010*] und eine Veröffentlichung als Co-Autor [*Bundke et al., 2008*].

Die Eigenanteile an der Veröffentlichung [*Bundke et al., 2008*] (Kapitel 3) werden im folgenden kurz aufgeführt:

Bundke et al [2008] - Unterkapitel 2.5: Bei diesem Unterkapitel der Veröffentlichung handelt es sich um eine Beschreibung des Aufbaus und Messprinzips des im Rahmen der vorliegenden Arbeit neu errichteten Eiskeimzählers *FRIDGE* - FRrankfurt Ice Deposition freezinG Experiment, (*übersetzt Frankfurter Experiment zum Depositionsgefrieren*) eine Entwicklung, die auf dem Messverfahren der statischen Vakuumdiffusionskammer basiert, (Abbildungen: Fig. 6 und Fig.7)

Bundke et al [2008] – Teile aus Kapitel 3.2: Hier besteht der Beitrag in der Veröffentlichung erster *FRIDGE*-Messergebnisse. Konkret handelt es sich dabei um die Messung von Eiskeim-Eigenschaften von unterschiedlichen Mineralstäuben.
(Abbildungen: Teile von Fig. 10 (gekennzeichnet mit *FRIDGE*))

Im Gesamtbild der vorliegenden Dissertation hat die Publikation von *Bundke et al [2008]* eine weitere Bedeutung, da weitere Vergleichsmessungen der IN-Konzentrationen zwischen den beiden dort vorgestellten Frankfurter Messverfahren zu der Erkenntnis geführt haben, dass eine Änderung des Proben-Trägers bei dem Eiskeimzähler *FRIDGE* notwendig war, die schließlich zu der Entwicklung einer neuen elektrostatischen Probenahme auf Siliziumscheiben (sogenannte *Wafer*). (zuvor wurden Membranfilter zur Aerosolprobenahme eingesetzt). Durch die neuartige Kombination zweier Verfahren (Kopplung der Vakuumdiffusionskammer mit einer elektrostatischen Aerosolprobenahme) und durch Aspekte einer Neuentwicklung (Entwicklung eines neuartigen Elektrostatischen Aerosolabscheiders) konnte ein Fortschritt erzielt werden.

Die nachfolgende Veröffentlichung [*Klein et al., 2009*] (Kapitel 4), präsentiert einerseits dieses neue Messverfahren und enthält zusätzlich Angaben über *FRIDGE*-Messungen von Arizona Test Dust, einem Standard-Aerosol. Die drei Veröffentlichungen (*peer-reviewed Journals*) sind in dieser Arbeit ab Kapitel 3 im jeweiligen Originallayout angefügt..

Im folgenden Abschnitt werden zunächst wichtige Basisinformationen zu den drei Veröffentlichungen dieser kumulativen Dissertation gegeben: Name der Publikation, der Name der Zeitschrift, Status und ein Überblick über den Inhalt

1.3 Inhaltsangaben (Publikationen)

The Fast Ice Nucleus Chamber FINCH ATMOSPHERIC RESEARCH (accepted 4.2.2008) (Co-Autor, Hauptautor: Ulrich Bundke)

(U. Bundke, B. Nillius, R. Jaenicke, T. Wetter, **H. Klein** und H. Bingemer)

Für die Messung von IN wurden am Institut für Atmosphäre und Umwelt der Uni-Frankfurt zwei Messverfahren und Instrumente entwickelt :

- a) ein in-situ-Gerät mit hoher Zeitauflösung (Fast In-Situ Ice Nuclei Chamber - FINCH) und
- b) ein Anreicherungs- und Nachweisverfahren, das die Eiskeime von zuvor auf einem Substrat gesammelten Aerosolproben aktiviert und zählt (Frankfurt Ice Deposition Freezing Experiment, *FRIDGE*), Gegenstand der vorliegenden Arbeit).

Die Messmethode von *FRIDGE* basiert auf einem bereits früher in Frankfurt verwendeten Verfahren (Stein, 1980). Die dafür benötigte Analysentechnik wurde mit dem Eiskeimzähler *FRIDGE* auf dem aktuellen Stand der Technik (Regelung, Bildaufzeichnung und -auswertung) neu entwickelt und gebaut. Die Veröffentlichung beschreibt dieses entwickelte Gerät und seinen Einsatz in Messungen der Schwellentemperaturen für heterogene Eisbildung an verschiedenen Mineralien (vgl. Abbildung 1.3)

A new method for sampling atmospheric ice nuclei with subsequent analysis in a static diffusion chamber ATMOSPHERIC RESEARCH (accepted 12.8.2009) (Erstautor, Klein et al., 2009)

(**Holger Klein**, Werner Haunold, Ulrich Bundke, Bjoern Nillius, Thomas Wetter, Stephan Schallenberg und Heinz Bingemer)

In dieser Publikation wird eine neue Technik der Probenahme von atmosphärischen Aerosol zur nachfolgenden Eiskeim-Analyse vorgestellt. Dabei wird zunächst durch ein neu entwickeltes elektrostatisches Abscheideverfahren (EAC-Electrostatic Aerosol Collector) mehr als 95% des Aerosols der beprobten Luft auf der gereinigten Oberfläche eines Silizium Wafer Probenträgers abgeschieden. Die Sammelvorrichtung ist transportabel, und einfach in der Anwendung. Anschließend wird die Aerosolprobe in der Vakuumdiffusionskammer *FRIDGE* analysiert. Im Unterschied zu dem zuvor verwendeten Verfahren, bei dem das Aerosol auf Membranfiltern abgeschieden wurde, ergeben sich mit dem neuen Verfahren Daten, die mit kontinuierlichen Eiskeimmessgeräten in der gemessenen Anzahlkonzentration der Eiskeime gut übereinstimmen, wie Parallelmessungen mit dem Eiskeimzähler FINCH gezeigt haben. Vergleichsmessungen zwischen der neuen Methode und dem früheren Verfahren, bei dem Membranfilter verwendet wurden, zeigen dagegen deutliche Abweichungen. Dabei waren die mit der neuen Methode gemessenen Konzentrationen im Mittel um einen Faktor 44.6 höher.

Eine mögliche Ursache besteht in der Tatsache, dass für die Analyse von Filterproben in einer Vakuumdiffusionskammer, Vaseline zur Porenversiegelung und für den Wärmekontakt eingesetzt werden muss.

Saharan Dust And Ice Nuclei Over Central Europe ATMOSPHERIC CHEMISTRY AND PHYSICS (accepted 13.10.2010)

(Erstautor, Klein et al., 2010)

(H. Klein, S. Nickovic, W. Haunold, U. Bundke, B. Nillius, M. Ebert, S. Weinbruch, L. Schuetz, Z. Levin, L. A. Barrie und H. Bingemer)

Die Ergebnisse von Messungen der atmosphärischen Eiskeimkonzentration während einer Periode Ende Mai 2008 am Kleinen Feldberg (Taunus) werden vorgestellt. Die Messungen wurden nach dem unter [**Klein et al., 2009**] vorgestellten Verfahren durchgeführt.

Während des ausgewählten Zeitraums Ende Mai, kam es zu einem großskaligen Transport von Mineralstaub nach Mitteleuropa, der aus einer Quellregion aus Algerien stammte.

Die Eiskeimkonzentrationen werden zusammen mit den Analysen eines Eulerschen regionalen Mineralstaub-Modells (DREAM) diskutiert. Zusätzlich werden die Ergebnisse anhand lokaler Messungen von aerosolphysikalischen Eigenschaften, wie dem Größenspektrum bewertet. Ergänzt wird die Untersuchung durch Element-Analysen der Zusammensetzung des Aerosols unter Verwendung eines Elektronenmikroskops (*Environmental Scanning Electron Microscope (ESEM)*).

Über den Verlauf von 6 Tagen wurde eine starke Korrelation zwischen den simulierten Staubkonzentrationen und den gemessenen Eiskeimkonzentrationen der Aerosolproben festgestellt. Es wird gefolgert, dass empirische Beziehungen zwischen Eiskeimkonzentrationen und Mineralstaub, möglicherweise für eine Vorhersage der Eiskeimkonzentrationen verwendet werden können, die für detaillierte mikrophysikalische Behandlung der Eisbildung bei der numerischen Wettervorhersage relevant ist.

1.4. Inhaltsangabe (ergänzende Kapitel)

Ein wichtiges Ziel der Frankfurter Gruppe des A2-Teilprojektes bestanden darin, eine langfristige Messreihe der Eiskeimkonzentration in Luftmassen Mitteleuropas aufzustellen, die zum einen als Basis für spätere Sensitivitätsstudien von Wolken und Niederschlagsentwicklung dienen soll. Darüber hinaus bietet der erstellte Datensatzes in Kombination mit zusätzlichen meteorologischen sowie aerosolphysikalischen Informationen, die Möglichkeit einer Suche nach geeigneten Proxies für die Analyse und Prognose der Eiskeimkonzentration in Mitteleuropa. In der letztgenannten Aufgabenstellung liegt der besondere Fokus von Kapitel 2 der vorliegenden Arbeit.

Es ist bekannt, dass mineralische Partikel im atmosphärischen Aerosol sich durch eine gute Eiskeimfähigkeit auszeichnen. In vorangegangenen Messungen von Eisresiduen und Eiskeimen [Kamphus *et al.*, 2009]; [Targino *et al.*, 2006]; [Heintzenberg *et al.*, 1996]; [Twohy und Gandrud, 1998]; [Chen *et al.*, 1998], [DeMott *et al.*, 2003] wurde nachgewiesen, dass sie den Hauptanteil an atmosphärischen Eiskeimen ausmachen können. Diese Arbeit bestätigt diese Ergebnisse. Der Einfluss von direktem Mineralstaubtransport aus der Sahara auf die Eiskeimkonzentration in Mitteleuropa wird anhand der Häufigkeit entsprechender Ereignisse in der Zeitreihe abgeschätzt.

Darüber hinaus wird gezeigt, dass die z.B. anhand von Sonnenphotometer-Messungen ableitbare Aerosol-Optische-Dicke (AOD_{Dust}) von Mineralstaub deutlich mit der Eiskeimkonzentration korreliert. Dies zeigt sich sowohl in Einzelmessungen als auch in Monatsmittelwerten. Anhand dieser Korrelation liefert die Arbeit eine erste Abschätzung für die saisonale Eiskeimverteilung über Europa in einer Höhe von 4,3 km. Der Einfluss weiterer Aerosolkomponenten auf die Eiskeimkonzentration wird diskutiert. Ebenso wird anhand des Wochengangs der gemessenen Zeitreihe die Möglichkeit eines zusätzlichen anthropogenen Einflusses auf die Eiskeimkonzentration behandelt.

1.5. Einführung in die Thematik

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Messung und Interpretation von Konzentrationen atmosphärischer Eiskeime in den Luftmassen Mitteleuropas. Eiskeime sind ein Bestandteil des atmosphärischen Aerosols und von grundlegender Bedeutung bei der Entstehung von Eiskristallen in Wolken. Sie stehen damit am Beginn einer Prozesskette für die Bildung von Niederschlag.

Als atmosphärische Aerosolpartikel bezeichnet man allgemein sowohl feste als auch flüssige Schwebeteilchen in der Luft, die in der Größenordnung von einem Partikeldurchmesser von einem Nanometer (10^{-9} m) bis mehr als 100 μm reichen. Atmosphärische Aerosolpartikel können sowohl natürlichen Ursprungs als auch anthropogenen verursacht sein und haben ihren Ursprung hauptsächlich im Bereich der Erdoberfläche bzw. der Meeresoberfläche. Zu diesen Quellen gehören zum Beispiel die Aufwirbelung von Staub, bzw. Wassertröpfchen (Meersalzaerosol) und natürliche Brände anthropogene Quellen sind z.B. Verbrennungsprozesse, landwirtschaftliche Prozesse und Straßenabrieb. Darüber hinaus können die Quellen auch aus dem inneren der Erde stammen, wie bei Vulkanausbrüchen. Der Luftverkehr emittiert Partikel direkt in höhere Schichten der Atmosphäre und kosmische Aerosolpartikel haben ihren Ursprung außerhalb des Systems Erde. Studien belegen, dass natürlicher Mineralstaub massenbezogen das häufigste Aerosol in der Atmosphäre ist [Wiacek *et al.*, 2009].

Bei der natürlichen Quelle der Staubaufwirbelung spielen Wüstenregionen eine Hauptrolle. In Modellstudien wurde dieser Beitrag auf 1100 – 5000 Teragramm (Tg) pro Jahr abgeschätzt [Engelstaedtler, 2006]. Dabei stammen je nach Schätzung bis zu 70 % der globalen Staub-Emissionen aus Wüstengebieten in Nord-Afrika und die Sahararegion ist mit einer Fläche von ca 9 Millionen km^2 die stärkste Quelle global.

1.5.1. Rolle des Aerosols bei der Wolken und Niederschlagsbildung

Bei Temperaturen oberhalb des Gefrierpunktes können im allgemeinen bei relativen Feuchten von ca. 100 %, Aerosolpartikel (AP) durch Kondensation des Wasserdampfes an ihrer Oberfläche anwachsen. Dies ist der Initialprozess zur Bildung von Wolkentropfchen in sogenannten warmen Wolken und man bezeichnet dementsprechend diese Aerosolpartikel auch als Wolkenkondensationskeime (CCN). Enthalten Aerosolpartikel lösliche Bestandteile, können sie auch bereits bei Feuchten unterhalb der Sättigung zu größenstabilen Tropfen anwachsen.

Man bezeichnet diese Entstehungsprozesse, mit der Beteiligung von Aerosolpartikeln, als heterogene Nukleation.

Von den warmen Wolken unterscheidet man die bei Temperaturen unter dem Gefrierpunkt auftretenden sogenannten Mischwolken, die sowohl flüssigen Wolkentropfchen als auch Eiskristallen enthalten, sowie Eiskristallen die nur aus Eiskristallen gebildet werden.

Bei der Bildung von Eiskristallen in der Atmosphäre unterscheidet man grundlegend zwischen heterogener und homogener Nukleation.

Bei der sogenannten homogenen Nukleation gefrieren Wassertropfen ab einer Temperatur unterhalb von -38°C , ohne dass dabei Aerosolpartikel als Nukleationskeime notwendig sind.

Für die Bildung von Eiskristallen bei höheren Temperaturen, bedarf es jedoch in der Atmosphäre eine Wechselwirkung mit einem geeigneten Aerosolpartikel um die Eiskristallisation einzuleiten. Diejenigen Aerosolpartikel, die diese Eigenschaft besitzen werden als Eiskeime (engl: Ice Nuclei , IN) bezeichnet. Man spricht in diesem Fall von heterogenem Gefrieren.

Vergleicht man die typische Anzahlkonzentrationen von Eiskeimen zu Wolkenkondensationskeimen (CCN) und dem Gesamtaerosol, wie es näherungsweise durch einen Kondensationskernzähler (*Condensation Particle Counter*, CPC) bestimmt wird, ergibt sich folgendes Bild (siehe Tabelle 1.1)

Tabelle 1.1 Durchschnittliche Anzahlkonzentrationen verschiedener Aerosolfraktionen

| | Durchschnittliche Anzahlkonzentrationen | Anteil bezogen auf CN |
|--|--|--------------------------------------|
| Eiskeime (IN) | Bis zu 100 pro liter | 0.001% |
| Wolkenkondensationskeime (Cloud Condensation Nuclei CCN) | Bis zu mehreren 100 pro cm ³ | 1 % |
| Kondensationskeime (Condensation Nuclei CN) | Bis zu mehreren 10000 pro cm ³ | 100 % |

Es gibt 4 verschiedene grundsätzliche Moden, wie ein geeignetes Aerosolpartikel als Eiskeim wirken kann (Vali, 2004):

Das Depositionsgefrieren: Bei Temperaturen unter dem Gefrierpunkt und Übersättigung in Bezug auf Eis sublimiert Wasserdampf direkt an der Oberfläche des Eiskeims und ein Eiskristall bildet sich

Bei dem Immersionsgefrieren wirkt ein Aerosolpartikel in einem unterkühlten Wassertropfen beim Unterschreiten einer Aktivierungstemperatur als Eiskeim. Das Aerosolpartikel kann zuvor bei Temperaturen über dem Gefrierpunkt als CCN gewirkt haben.

Mit Kondensationsgefrieren wird der Vorgang beschrieben, bei dem unterhalb des Gefrierpunktes bei Übersättigung in Bezug auf Wasser, Wasserdampf an einem Eiskeim zunächst kondensiert und unter geeigneter Aktivierungstemperatur anschliessend spontan gefriert.

Kontaktgefrieren bezeichnet das Ausfrieren eines unterkühlten Wolkentröpfchens durch Kollision seiner Oberfläche mit einem Eiskeim, wobei das entsprechende Aerosolpartikel sowohl von außen auf den unterkühlten Tropfen treffen kann, als auch ein in dem Tropfen vorhandenes Partikel von innen gegen die Tropfenoberfläche stoßen kann.

In Abbildung 1.1 [Vali, 2004] sind die beschriebenen Gefriermoden in einer schematischen Übersicht dargestellt:

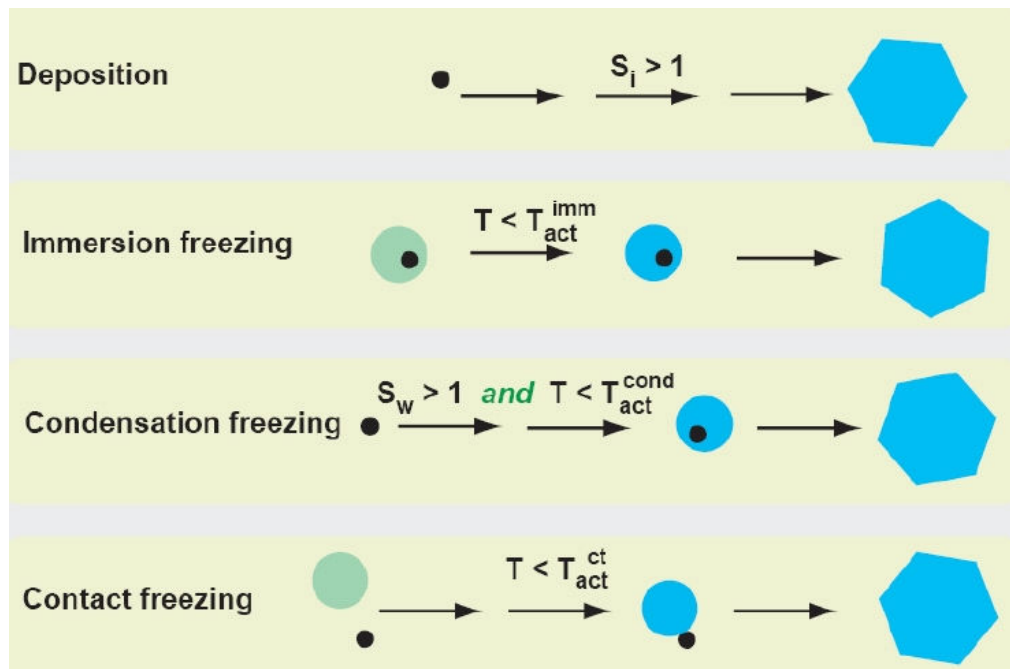


Abbildung 1.1: schematische Darstellung der vier unterschiedlichen Gefriermoden (Depositionsgefrieren, Immersionsgefrieren, Kondensationsgefrieren und Kontaktgefrieren) [Vali, 2004]

Die jeweiligen Werte der Eiskeimkonzentration können für die einzelnen Moden durchaus unterschiedlich sein.

Die in den nachfolgenden Kapiteln präsentierten Daten mit der Vakuumdiffusionskammer *FRIDGE* [Bundke et al., 2008]; [Klein et al., 2009] beziehen sich aufgrund des Messverfahrens auf den Mode des Depositionsgefrierens und bei Messungen mit Feuchten nahe dem Sättigungswert Wert $RH = 100\%$ auch auf den Mode des Kondensationsgefrierens. Der Prozess des Immersionsgefrierens tritt unter anderem in der Vakuumdiffusionskammer auf, wenn die Eiskeime intern gemischte Partikel mit einem hygroskopischen Anteil sind. Dieser wird bei Feuchten $S_w < 1$ durch Deliquescenz als CCN aktiviert und gefriert bei der entsprechenden Eiskeim-Aktivierungs Temperatur (T_{Akt}) aus

Es ist mit den gegebenen technischen Möglichkeiten der Messkammer bislang nicht möglich, die verschiedenen Moden in der Kammer durch direkte Beobachtung zu unterscheiden, weil das Messverfahren und die verwendete Optik allein für den Nachweis von aktivierten Eiskeimen konzipiert ist. Für die Zählung der aktivierten Aerosolpartikel wird dabei der Prozess des Anwachsens zu kleinen Eispartikeln ausgenutzt. Dadurch wird es messtechnisch möglich, die aktivierten Eiskeime durch das kontrollierte Anwachsen der primären Eispartikel nach kurzer Zeit aufgrund der Zunahme der Größe auf einfachem Wege sicher von den restlichen Aerosolpartikeln zu unterscheiden.

Bei den kontinuierlichen Eiskeim-Messverfahren [Rogers, 1988]; [Bundke et al., 2008] (Kapitel 3), die sich konzeptionell von den statischen Messkammern unterscheiden, wird jedoch ebenfalls, wenn auch durch eine andere Methode, das Anwachsen der aktivierten Eiskeime vor der Zählung ausgenutzt..

Für eine Unterscheidung aller Gefriermoden auf direktem Wege, ist eine zeitlich hochfrequente Kontrolle der Veränderungen an der Aerosoloberfläche einzelner Partikel beim Zeitpunkt des Einsetzens der Nukleation notwendig.

Der Gefriermode Kontaktgefrieren (*Contact-Freezing*) findet in einer statischen Messkammer nicht statt.

In Abbildung 1.2 sind Ergebnisse für die jeweilige Eiskeimkonzentration in atmosphärischen Aerosolproben bei verschiedenen Gefriermoden gegenübergestellt worden. Die Daten basieren auf unterschiedlichen Messmethoden,

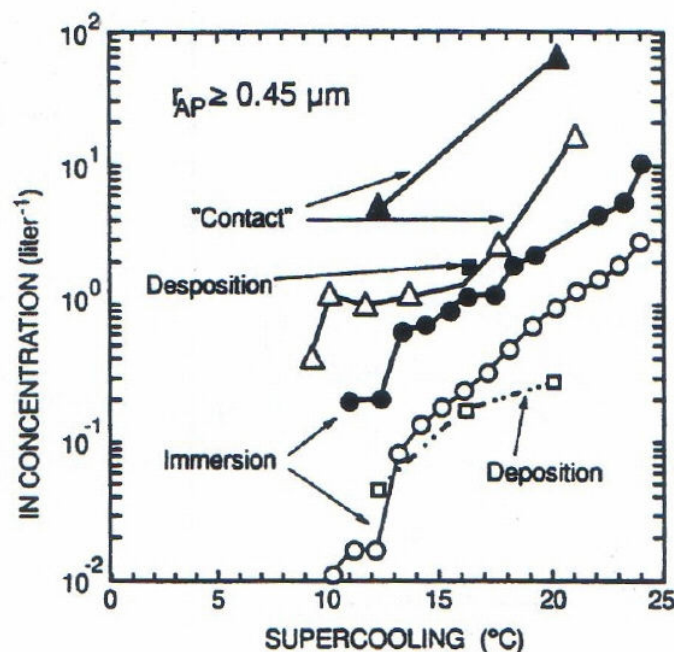


Abbildung 1.2 Eiskeimkonzentrationen verschiedener Messreihen/Messungen in logarithmischer Darstellung in Abhängigkeit der Temperaturdifferenz zu 0°C (für $T < 273.15 \text{ K}$) Die Daten gelten für Partikel mit einem Durchmesser $d \geq 0,9 \mu\text{m}$. Der jeweilig untersuchte Nukleationsmode ist mit angegeben.

Offene Symbole repräsentieren Beobachtungen in Laramie (Wyoming) im Winter.

Gefüllte Symbole stehen für Messungen auf Elk Mt. (3400m (Wyoming))

[Pruppacher, 1997, Cooper, 1980]

Neben der starken Zunahme der IN-Konzentration bei sinkender Aktivierungstemperatur (bzw. steigender Unterkühlung bezogen auf den Gefrierpunkt), zeigen diese Messergebnisse deutliche Unterschiede zwischen den verschiedenen Moden Kontaktgefrieren, Depositionsgefrieren und Immersionsgefrieren.

Neben der Temperaturabhängigkeit ist die Luftfeuchtigkeit ein weiterer entscheidender Parameter für die Aktivierungsbedingungen atmosphärischer Eiskeime. Unterhalb des Gefrierpunktes unterscheidet man zwischen der relativen Feuchte bezogen auf eine Eisoberfläche und relativer Feuchte bezogen auf eine Wasseroberfläche. Es kann eine Luftmasse übersättigt in Bezug auf Eis sein, auch wenn die relative Feuchte dabei jedoch noch unterhalb der Wassersättigung liegt.

Im Allgemeinen steigt bei einer atmosphärischen Aerosolprobe die Eiskeimkonzentration mit wachsender Feuchte und sinkender Aktivierungstemperatur.

Schaller und Fukuta haben in Ihrer Arbeit für verschiedene Testaerosole in einer Diffusionskammer untersucht, ab welchen Temperaturen die Eiskondensation bereits unterhalb der Wassersättigung einsetzt und auf diese Weise Schwellentemperaturen für das Depositionsgefrieren bestimmt (siehe Abbildung 1.3)

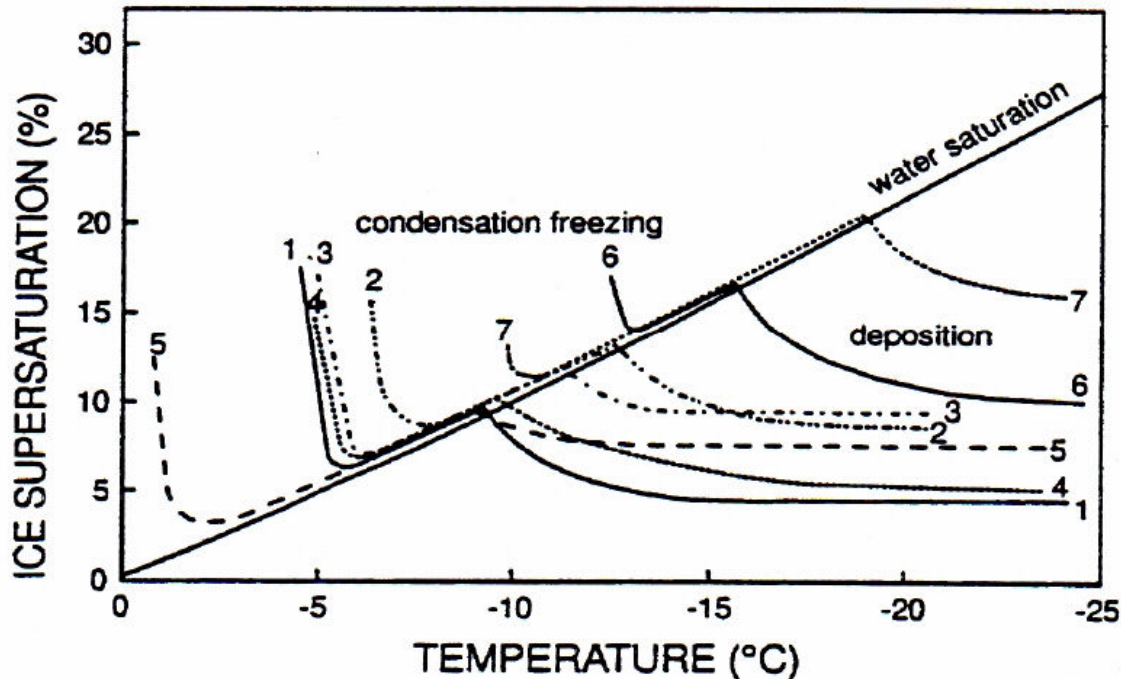


Abbildung 1.3 Grenztemperaturen für die Eiskondensation in Abhängigkeit von Temperatur und Feuchte für verschiedene Komponenten. Bedingungen für Kondensationsgefrieren und Depositionsgefrieren sind markiert. Eiskeimaktivierung findet bei Bedingungen statt, die im Diagramm oberhalb der Grenzlinien liegen. Die untersuchten Substanzen sind Silberiodid (AgI) (1); PbI (2); 1.5 Dihydroxynaphthalene (3); Phloroglucinol (4) Methaldehyde (5) Bodenprobe (6), Kaolinit (7) [Schaller and Fukuta, 1979]

In Mischwolken sind Eisteilchen und unterkühlte Wassertropfen gleichzeitig vorhanden. In den Breitengraden Mitteleuropas bilden diese Wolken eine wesentliche Voraussetzung für die Entstehung von Niederschlägen. Die Temperaturen liegen dabei in einem Bereich zwischen -10 °C und -35 °C.

Die Eisteilchen in diesem Temperaturbereich entstehen zunächst durch heterogene Nukleation an Eiskeimen (primäre Eisbildung). Aufgrund der stärkeren Bindung der Wassermoleküle in der Kristallstruktur einer gefrorenen Oberfläche stellt sich bei gleicher Temperatur ein geringerer Sättigungsdampfdruck von Wasserdampf über einer Eisoberfläche als über einer flüssigen Oberfläche ein. Dieser Zusammenhang führt in Mischwolken zu einer andauernden Diffusion von Wasserdampf ausgehend von den flüssigen Wolkenelementen zu den Eiskristallen. Dadurch kommt es zu einem verstärkten Anwachsen der Eispartikel. Durch Koagulation und Koaleszenz von Eiskristallen untereinander und Eiskristallen und Wassertropfen können dann Eiskristalle u.a. durch Bereifung zu größeren Einheiten anwachsen, die schließlich ein Gewicht erlangen können, dass sie als Niederschlagselemente aus der Wolke ausfallen lässt.

Die Grundlagen für diesen Vorgang wurden zuerst von Bergeron (1935) beschrieben, in der Literatur wird dieser Prozess als Bergeron-Findeisen Prozess bezeichnet.

Auf dem Weg durch wärmere Regionen der Troposphäre kommt es oftmals zum Auftauen der gefrorenen Niederschlagselemente, so dass diese den Erdboden als Regen erreichen

Mit dem Begriff sekundäre Eisbildung fasst man alle Prozesse zusammen, die im Anschluss an die primäre Eisbildung zu einer Erhöhung der Konzentration von Eispartikeln in einem Luftpaket beitragen. Dazu gehört unter anderem der Prozess des Zersplittersns von Eispartikeln während der Vergraupelung, das Zerfallen von Eiskristallen und das Zerschlagen von gefrorenen Tröpfchen.

Zum Abschluss der Einleitung werden in Abbildung 1.4 unter anderem eine Reihe von Prozessen dargestellt, die sich in der Atmosphäre an die primäre Eisbildung anschließen können

In Abbildung 1.4.a) werden die Prozesse und Transformationen aufgeführt, die zwischen unterschiedlichen Typen von Hydrometeoren in der Atmosphäre stattfinden können. (Vössing, 2001).

In Abbildung 1.4 b) ist der grundlegende Prozess der Niederschlagsbildung in Mischwolken vereinfacht dargestellt (Curtius, 2009)

Die schematischen Darstellungen beginnen mit dem Schritt der Aktivierung von geeigneten Aerosolpartikeln als Kondensationskeim und Eiskeim, der bei geeigneten Bedingungen in Bezug auf Temperatur und Feuchte in der Atmosphäre stattfindet.

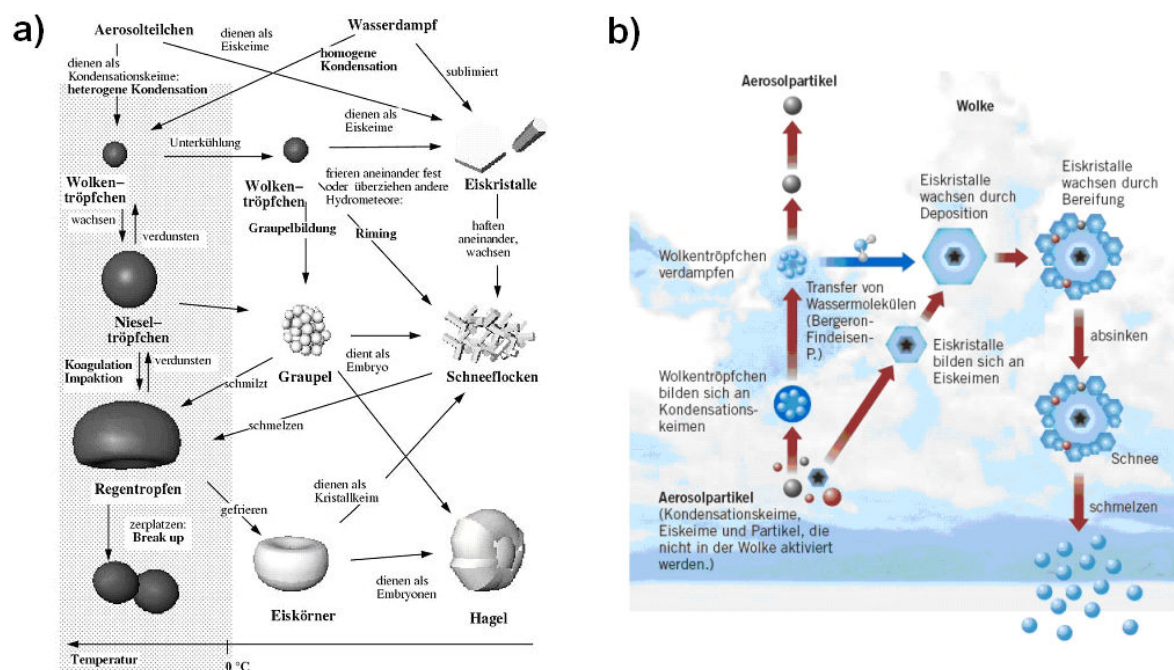


Abbildung 1.4: (a) Beziehung zwischen Hydrometeoren und Aerosolpartikeln in der Atmosphäre (Quelle: [Vössing, 2001])
(b) vereinfachte schematische Darstellung der Niederschlagsbildung in Mischwolken unter dem Einfluss von Aerosolpartikeln (als IN und CCN) über Primäreisbildung, Bergeron-Findeisen Prozess, sekundäre Prozesse wie Bereifung (Quelle: [Curtius, 2008])

Die folgenden Kapitel der vorliegenden Arbeit fokussieren sich dann auf den Prozess der heterogenen, primären Eisbildung, wobei hierbei insbesondere die zeitliche/räumliche Variation der Konzentration von Eiskeimen in der Atmosphäre Zentraleuropas im Mittelpunkt steht.

Kapitel 2

Variabilität der Eiskeimkonzentration in Mitteleuropa

2.1. Einleitung

Langzeit-Messreihen von Eiskeim-Konzentrationen in Luftmassen über Mitteleuropa über den Zeitraum eines Jahreszyklus sind in der aktuellen Literatur nicht zu finden. In den letzten 30 Jahren hat sich der Schwerpunkt der Messtechnik für Eiskeimmessungen auf kurzzeitige, hochaufgelöste Messungen verlagert. Dabei kommt vor allem das neuere kontinuierliche in-situ Messverfahren der Continuous-Flow-Diffusion-Chamber (CFDC, [Rogers, 1988]) zum Einsatz. Dabei strömt der Probenluftstrom, umgeben von einem Mantelstrom durch den Zwischenraum, der von zwei ineinander geschobenen Zylindern der Messkammer gebildet wird. Beide Wände können unterschiedlich temperiert und für die Eiskeim-Aktivierung mit Eis beschichtet werden. Damit sind die Voraussetzungen dafür gegeben, Temperatur und Wasserdampf-Übersättigung für den Aerosol-Probenluftstrom einzuregeln und somit das Eiskristallwachstum an den enthaltenen Eiskeimen unter kontrollierten Bedingungen einzuleiten. Die Eispartikel im Probenluftstrom können in Folge des Anwachsens ihrer Größe schließlich am Auslass des Instruments mit einem optischen Partikelzähler getrennt von den Aerosolpartikeln detektiert werden.

Ein weiteres kontinuierliches Eiskeim-Messverfahren, bei dem die Wasserdampf-Übersättigung durch die Mischung zweier Luftströme erreicht wird, wurde innerhalb des Sonderforschungsbereichs 641 von einer benachbarten Arbeitsgruppe entwickelt. Details dazu finden sich in den Arbeiten von *Nillius* [2008] sowie ebenfalls in der Veröffentlichung von *Bundke et al.* [2008].

Die kontinuierlichen Techniken sind für einen Dauerbetrieb aufwendiger und werden daher für Langzeitmessungen bislang kaum eingesetzt.

Ältere Zeitreihen existieren z.B. aus Österreich von *Müller et al.* [1969], basierend auf Messungen mit einer Wolkenkammer. Veröffentlichte Messungen von z.B. *Schmidt* [1975] mit einer Filtermethode liegen ebenfalls über 30 Jahre zurück.

Analysen in Luftmassen außerhalb Europas sind z.B. von *Bertrand et al.* [1973] für Abidjan in West-Afrika (Dezember 1967 bis März 1970) vorhanden und von *Kitagawa-Kitage und Maruyama* [1979] in Tokyo (April 1968 – März 1970). *Bertrand et al.* [1973] vermuteten einen Zusammenhang zwischen hohen Eiskeimkonzentrationen und einhergehenden Transporten von Mineralstaub aus Wüstenregionen. Zentralafrikas. Dabei werden die höchsten Eiskeimkonzentrationen während der Trockenperiode im Januar beobachtet. Die Ergebnisse von *Kitagawa-Kitage und Maruyama* zeigen hohe IN-Konzentrationen in kontinentalen Luftmassen und werden von den Autoren auch im Zusammenhang mit Mineralstaub diskutiert. Es handelt sich bei den Aussagen jeweils um qualitative Aussagen. *Castro et al.* [1998] haben über mehrere Monate Eiskeimmessungen in Leon, Spanien durchgeführt. Sie folgern aus begleitenden Trajektorienanalysen einen Zusammenhang von Episoden mit hohen Eiskeimkonzentrationen mit Mineralstaubtransport aus der Sahara. Diese Ergebnisse geben Anlass, besonders den Einfluss des mineralischen Aerosols auf IN zu untersuchen.

In der vorliegenden Arbeit wurde das Verfahren einer statischen Vakuumdiffusionskammer verwendet. Es ist in den Publikationen von *Klein et al.* [2009] und *Bundke et al.* [2008] detailliert beschrieben (siehe in Kapitel 3, bzw. Kapitel 4). Dieses Messverfahren bietet die

Möglichkeit durch eine einfache elektrostatische Probenahme auf Silizium Wafer-Probeträgern eine aktuelle Eiskeim-Messreihe auf Basis täglicher Probenahme zu erstellen.

Die Aufnahme einer aktuellen langfristigen Eiskeim-Zeitreihe ermöglicht die Chance, den Verlauf der Eiskeimkonzentration gemeinsam mit anderen modernen verfügbaren Aerosolmessdaten in einer Zusammenschau und Korrelationen zu betrachten, um aus dem Erkenntnisgewinn Ansätze für eine mögliche Modellierung der Eiskeimkonzentration zu erarbeiten.

Die in dieser Arbeit gewählte Vorgehensweise für dieses Ziel untergliedert sich in mehrere Punkte.

In Kapitel 2.2.1 wird im Zusammenhang mit der Aufgabenstellung die Wahl des Standortes für die Probenahmen erläutert. Das Kapitel 2.2.2 gibt eine Übersicht über die Zusammensetzung des Aerosols an dem Messstandort. Anschließend wird im folgenden Abschnitt 2.2.3 dargestellt, in welcher Weise die Probenahmen und Messungen durchgeführt wurden.

Es folgt im Kapitel 2.3.1 die Präsentation und erste Interpretation der gemessenen Zeitreihe und danach eine Behandlung des lokalen, bzw. regionalen Einflusses auf die Ergebnisse der Zeitreihe (Kapitel 2.3.2). Nachdem der Wochengang der IN-Konzentration in Kapitel 2.3.3. in Bezug auf einen anthropogenen Einfluss diskutiert wird, stellt Kapitel 2.4. den Jahresgang der gemessenen Eiskeimkonzentrationen anhand von Monatsmittelwerten in den Mittelpunkt. Da die Auswertung der Eiskeimzeitreihe induziert, dass die Messergebnisse maßgeblich vom Mineralstaubferntransport beeinflusst werden, wird im folgenden Kapitel 2.5. gesondert auf die Quellgebiete des Saharastaubes und seine Transportwege eingegangen.

Bevor im Kapitel 2.7 weitere Aerosolkomponenten behandelt werden, stellt Kapitel 2.6. den Jahresgang der Eiskeimkonzentration in Bezug auf die verschiedenen Wege des Ferntransports dar.

Das IN-Aktivierungsspektrum der Messreihe (die IN-Konzentration in Abhängigkeit von Temperatur und Feuchte) wird im Kapitel 2.8 in Bezug auf die Jahresmittelwerte behandelt.

Kapitel 2.9 behandelt die Fragestellung in wie weit der Messstandort im Rahmen dieser Untersuchung repräsentativ für Mitteleuropa ist. Daran anschließend werden verschiedene Telekonnection Indizes im Zusammenhang mit den Messergebnissen betrachtet (Kapitel 2.10). Schließlich folgt im Kapitel 2.11 eine Beurteilung möglicher Indikatoren der Eiskeimkonzentration. Nach der Darstellung der Abschätzung der Eiskeimverteilung über Europa (Kapitel 2.12) werden im Ergebnis und Fazit (Kapitel 2.13) die wichtigsten Resultate kurz zusammengefasst. Die Untersuchung der Eiskeimzeitreihe endet mit einer Zusammenfassung und einem Ausblick (Kapitel 2.14).

2.2 Messung der atmosphärischen Eiskeimkonzentration

2.2.1 Wahl der Messstation (Kleiner Feldberg/Taunus)

Zur Bearbeitung der Fragestellung nach der Variabilität der Eiskeimkonzentration in den Luftmassen Mitteleuropas wurde die Messstation am Kleinen Feldberg nahe Frankfurt (*Taunus-Observatorium, TO*) als Standort gewählt. Die Messstation befindet sich auf einem Mittelgebirgszug zwischen dem Rhein-Main Gebiet und dem ländlichen geprägten Hintertaunus und Lahntal. Die Lage des Kleinen Feldbergs und die umgebende Orographie sind in der Karte in Abbildung 2.1 dargestellt.



Abbildung 2.1 topographische Karte der Lage des Kleinen Feldbergs mit markierten Tälern [aus Hessisches Landesvermessungsamt, Blatt L 5716, 1995] - Maßstab [1:50000]..

Im Vergleich zu einer Probensammlung z.B. in Frankfurt, die ebenfalls denkbar gewesen wäre, ist der Kleine Feldberg von einem lokalen Einfluss anthropogener Quellen weitgehend entkoppelt und wird als Hintergrundstation [Quass, 2008] angesehen. Mit einer Höhe von 825 m über dem Meeresspiegel liegt das Taunus-Observatorium in Abhängigkeit von der Wetterlage oftmals oberhalb der planetaren Grenzschicht.

Die wesentliche Motivation dafür, die Variabilität der Eiskeimkonzentration an einem Messstandort zu erfassen, besteht darin, auf diesem Wege Kenntnisse zu erlangen, die dann aber auf die Prozesse der Niederschlagsbildung in den Wolken in gewissen Rahmen übertragbar sein müssen. Ebenso wird der Fokus dabei nicht auf lokale Phänomene, sondern

auf den Raum Zentraleuropa gelegt. Unter dieser Zielvorgabe erscheint die Messung an einer Hintergrundstation auf einer Bergkuppe in zweierlei Hinsicht vorteilhaft:

Eine Hintergrundstation, die vom Einfluss direkter Quellen entkoppelt ist, bietet einerseits eine bessere Voraussetzung dafür, dass Messergebnisse nicht von lokalen Faktoren dominiert werden und daher besser übertragbar auf größere Regionen sind.

Unter der gegebenen Situation, dass eine tägliche Probenahme in der freien Atmosphäre auf dem Höhenniveau der Wolkenbildung logistisch und finanziell nicht zu realisieren ist, kommt man andererseits mit der Wahl einer Bergstation mit freier Anströmung dieser Idealvorstellung näher, als z.B. durch eine Messung in der urbanen Grenzschicht.

2.2.2 Charakterisierung des Aerosols

Die Zusammensetzung und die optischen Eigenschaften des Aerosols an dem Messstandort Kleiner Feldberg wurden in vorausgehenden Studien behandelt. So berichten *Ebert et al.* in Ihrer Veröffentlichung [*Ebert et al.*, 2004] über die Ergebnisse der Analyse von 27.000 Aerosolpartikeln (Partikel-Durchmesser 0,1-25 μm), die in den Jahren 1997 und 1998 per Impaktion auf Probenträgern abgeschieden wurden. Die Klassifizierung der Einzelpartikel fand anschließend anhand hochauflösender Rasterelektronen-Mikroskopie und Röntgenfluoreszenzanalyse statt.

Abbildung 2.2 zeigt daraus resultierende Ergebnisse zur Zusammensetzung des Aerosols am kleinen Feldberg:

Aerosolproben vom Kleinen Feldberg, die anhand der Anströmungsrichtung als „urban beeinflusst“ klassifiziert wurden, zeichnen sich hier durch einen großen Rußanteil (englisch: *soot*) aus (Abbildung 2.2 - A). Ebenfalls separat betrachtet wurden Proben, bei denen ein hoher Anteil an Sulfat-Aerosol detektiert wurde (Abbildung 2.2 - B).

Anteile von Silikaten und Alumosilicaten, die allgemein für Mineralstaub-Aerosol typisch sind, sind in diesen Fällen („urban beeinflusst“ und „dominiert von Sulfataerosol“) mit Anteilen von zusammengefasst 13 und 11 % vertreten. *Ebert et al.* betonen jedoch, dass kleine Partikel von Flugasche ($d < 1 \mu\text{m}$) ebenfalls in diese Kategorie fallen, so dass es sich nicht um einen reinen Mineralstaubanteil handelt.

Die übrigen Proben werden gemäß den Autoren dem ländlichen Hintergrund zugeordnet (Abbildung 2.2 – C). Der Anteil von Silikaten und Alumosilicaten beträgt zusammengefasst 50 %. Eine Auftragung der Zusammensetzung in Abhängigkeit von der Partikelgröße (Abbildung 2.2 – D) zeigt dabei, dass bei großen Partikeln (Durchmesser $d > 1 \mu\text{m}$) auch eine beachtliche Komponente biologischer Partikel vorliegt. Im Gesamtbudget aller untersuchten Partikel ist der Anteil biologischer Partikel dagegen mit einem Anteil von ein bis zwei Prozent deutlich untergeordnet.

Die optischen Eigenschaften des Aerosols am Kleinen Feldberg wurden in der Vergangenheit von *Bundke* [1997] untersucht. Dort zeigten sich für verschiedene Trajektorientypen unterschiedliche mittlere Schwächungskoeffizienten. Diese Ergebnisse stützen sich auf Messungen aus dem Jahr 1996. Die Schwächungskoeffizienten wurden dabei durch eine Anreicherung von Aerosol auf Filtern und anschließender Analyse mit einem polaren Photometer ermittelt. Es resultierten für kontinentale Luftmassen, sowie für Luftmassen aus dem Mittelmeerraum erhöhte Werte der Schwächungskoeffizienten. Im Verhältnis zum urbanen Raum Frankfurt waren die Schwächungskoeffizienten am kleinen Feldberg zumeist um vier bis acht Prozent geringer, was auf den höheren Rußgehalt in urbanen Aerosolproben zurückgeführt werden kann. Eine direkte Beeinflussung der Messwerte am kleinen Feldberg durch das urbane Aerosol bei entsprechenden Anströmungsrichtungen konnte aus dem diesem Datensatz der Schwächungskoeffizienten jedoch nicht gefolgert werden. [*Bundke*, 1997]

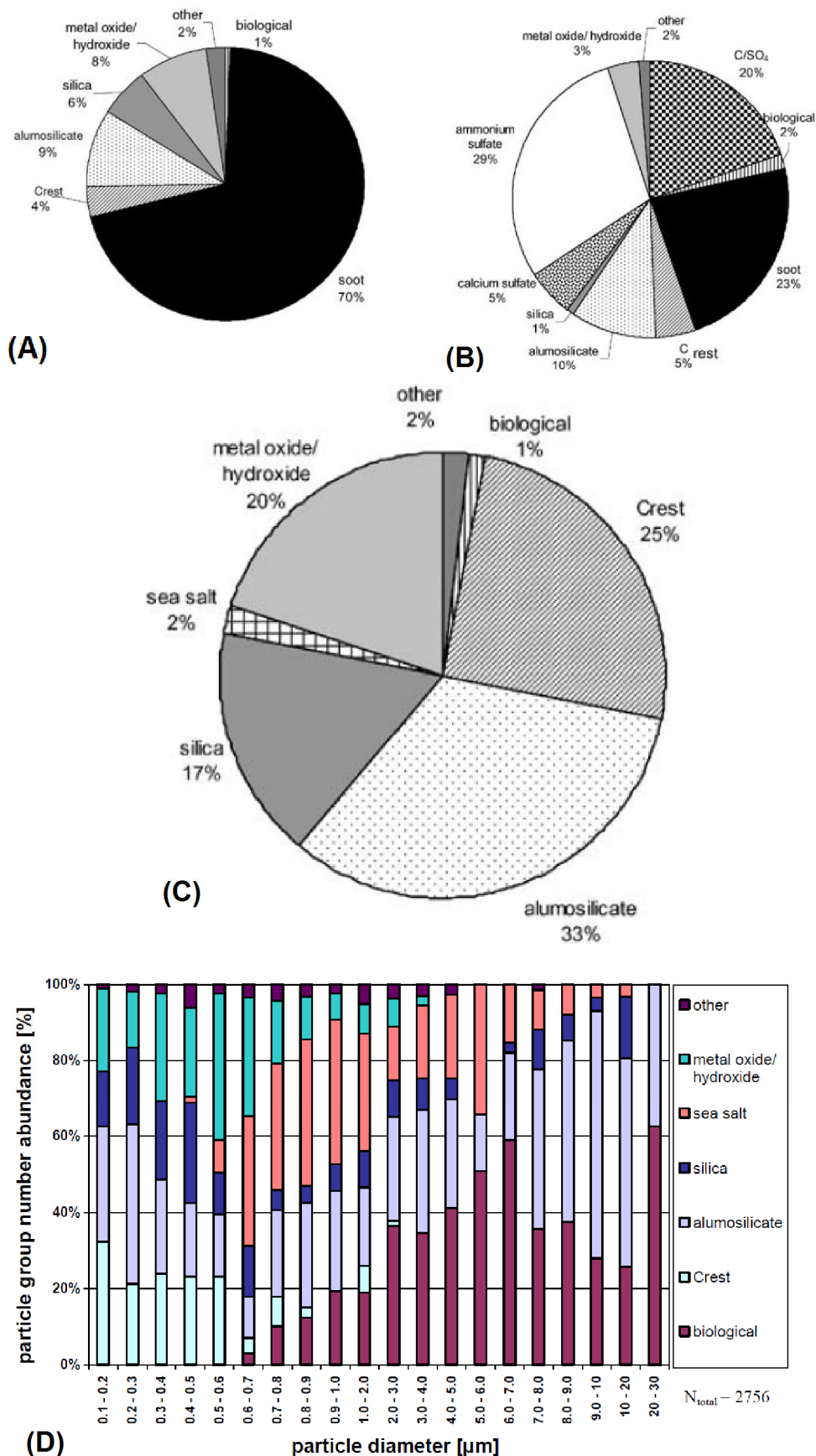


Abbildung 2.2 (A-C) Partitionierung der Aerosolpartikel von 0,1-3μm (entsprechend Partikelanzahl) am Taunus Observatorium (Juli 1997- Juni 1998) (A: Aerosol mit urbanen Einfluss, B: ländlicher Hintergrund, C: dominiert von Sulfataerosol. D: Partitionierung in Abhängigkeit von Partikeldurchmesser (Quelle: [Ebert et al., 2004])

Weitere Ergebnisse zur Aerosolzusammensetzungen am Kleinen Feldberg liefert ein Bericht, der 2008 im Auftrag des hessischen Umweltministeriums erstellt wurde.

Im Zeitraum von 19.10.2006 bis 23.04.2007 wurde die chemische Zusammensetzung der PM₁₀ Staubfraktion in Hessen anhand von Filter-Analysen untersucht [Quass, 2008]. Die mittlere PM₁₀ Konzentration am Kleinen Feldberg betrug in diesem Zeitraum 9,4 µg/m³. Abbildung 2.3 zeigt die durchschnittliche Aufteilung, wobei die Komponente Rest (14%) wahrscheinlich aus (nicht analysierten) Silikaten, Karbonaten von Mineralstaub und einem Anteil gebundenen Aerosolwassers besteht.

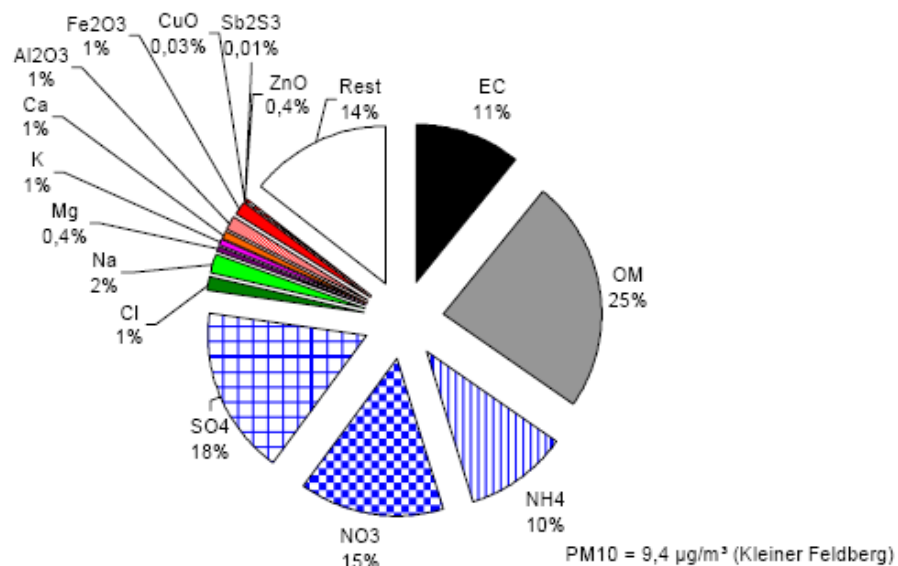


Abbildung 2.3 Chemische Zusammensetzung der Beiträge von PM₁₀ der Region Hintergrund / kleiner Feldberg (OM-Organic Material EC-Elemental Carbon) (Quelle: [Quass, 2008])

Mittels einer Faktorenanalyse wurde die gemessene chemische Zusammensetzung in mehrere Faktoren aufgeteilt. Dabei besitzt die mineralischen Komponente (Erdkruste/Al), die für die Eiskeimkonzentration von besonderer Bedeutung ist einen Beitrag von 8,3 %. Diese beinhaltet umfasst Silikate, Karbonate des Restanteils und die Komponenten Aluminium, Magnesium, Kalium, Calcium, Eisenoxid sowie Natrium

Für die Station „Kleiner Feldberg“ zeigt die Studie von Quass [2008], dass die höchsten gemessenen Konzentrationen der Erdkrustenelemente und damit auch die höchsten Faktorbeiträge durch Ferntransport hervorgerufen werden.

2.2.3 Probenahme am Taunus Observatorium

Am 23. April 2008 wurde an der Messstation am Kleinen Feldberg im Taunus begonnen, nach dem in der Veröffentlichung [Klein *et al.*, 2009] (Kapitel 4) beschriebenen Verfahren auf täglicher Basis eine elektrostatische Aerosolsammlung auf Silizium-Wafern durchzuführen.

Das verwendete Einlasssystem (Abbildung 2.4) wird in Kapitel 5 [Klein *et al.*, 2010] detailliert vorgestellt. Die dort präsentierten Messdaten für die Messperiode Ende Mai 2008 sind ein Teil der hier diskutierten gesamten Messreihe.

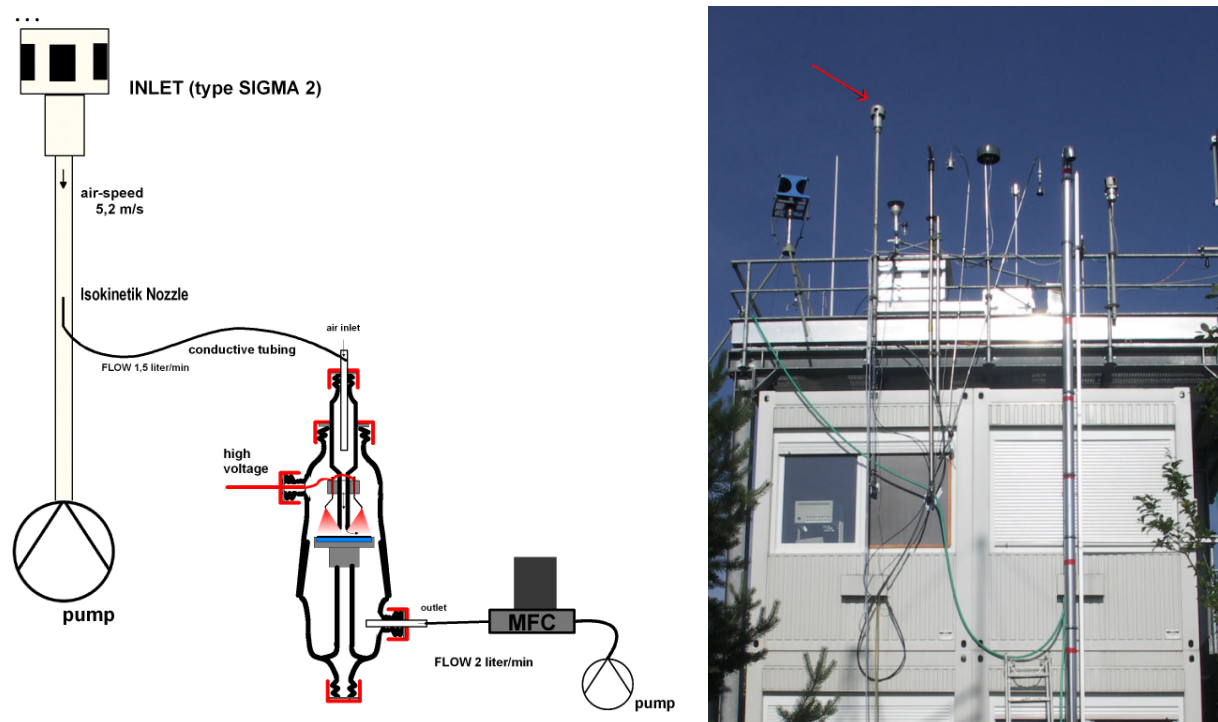


Abbildung 2.4:

(links) Schema des Aufbaus für die Probensammlung am Kleinen Feldberg
(rechts) Probennahme Stelle am Containerdach mit Markierung des Probeneinlass
(Sigma-2-Abscheider) (roter Pfeil)

Die gesammelten Proben wurden möglichst zeitnah (meist innerhalb von zwei Folgetagen) bei verschiedenen Aktivierungstemperaturen und relativen Feuchten analysiert. Eine vollständige Analyse umfasste dabei drei Temperaturwerte mit jeweils drei verschiedenen Feuchten (siehe Tabelle 2.1). Die genaue Temperierung des Wasserdampf-Reservoirs zur Einregelung der Feuchte vor dem eigentlichen Messvorgang benötigt vor allem beim Wechsel zwischen den drei Temperaturwerten deutlich mehr Zeit als der Messvorgang selber. Damit ist die Anzahl der Proben pro Messtag limitiert. Um alle Proben möglichst zeitnah zu analysieren und für jede Probe die Analyse innerhalb eines Tages abzuschließen, war es zum Teil notwendig, das Messprogramm von einer vollständigen Analyse dementsprechend einzuschränken.

Deshalb sind die Anzahlen der ausgeführten Analysen in Bezug auf jeweils verschiedene Aktivierungsbedingung voneinander unterschiedlich, auch wenn man dabei den selben Zeitraum betrachtet.

In Tabelle 2.1. sind neun unterschiedliche Aktivierungsbedingungen aufgetragen, die für die Vermessung der Aerosolproben in der FRIDGE-Kammer [*Klein et al., 2009*] (Kapitel 4) festgelegt wurden.

Dabei sind die Werte der Relative Feuchte in Tabelle 2.1 in zwei unterschiedlichen Formaten angegeben. Einmal relativ zum Wert der Wasserdampfsättigung, die sich im Gleichgewicht mit einer Eisoberfläche ($RH_{\text{Eis}} = 100\%$) einstellt, und alternativ dazu die Relative Feuchte, die sich in analoger Weise auf eine unterkühlte Wasseroberfläche bezieht. Meistens wurden für ein Eiskeim-Aktivierungsspektrum alle neun verschiedenen Kombinationen von Temperatur und Relativer Feuchte aus Tabelle 2.1 in der angegebenen Abfolge ausgewählt, wobei die Messung bei niedrigster Aktivierungstemperatur und höchster Übersättigung zuletzt durchgeführt wurde.

Tabelle 2.1 Aktivierungsbedingungen für die Eiskeimanalyse (3 Temperaturen mit jeweils 3 Feuchten) für die Aufnahme der Eiskeimzeitreihe mit FRIDGE

| Aktivierungstemperatur [°C] | Relative Feuchte (Eis) [%] | Relative Feuchte (Wasser) [%] | Anzahl der Analysen |
|--------------------------------|-------------------------------|----------------------------------|---------------------|
| -8 | 103 | 95.2 | 402 |
| -8 | 105 | 97.1 | 439 |
| -8 | 107 | 98.9 | 452 |
| -13 | 106 | 93.3 | 515 |
| -13 | 110 | 96.8 | 648 |
| -13 | 113 | 99.5 | 645 |
| -18 | 111 | 93.1 | 517 |
| -18 | 115 | 96.4 | 635 |
| -18 | 119 | 99.8 | 623 |

Bei der Interpretation der Tageswerte der Zeitreihe ist zu berücksichtigen, dass es sich bei dem beschriebenen Messverfahren nicht um ein kontinuierlich messendes Verfahren handelt. So beziehen sich die in den nächsten Kapiteln dargestellten Konzentrationswerte jeweils auf die mittlere Eiskeimkonzentration während eines Zeitfensters.

Dieses Zeitfenster ist dabei durch die Dauer der Probenahme mit der elektrostatischen Sammlung festgelegt. (In der Regel betrug die Probenahmezeit dabei jeweils fünf Minuten, in Ausnahmefällen, z.B. bei geringer Aerosolbelastung, wurde sie auf 30 Minuten erhöht.)

Bei besonders interessanten Situationen, wie zum Beispiel bei direktem Staubtransport aus Regionen der Sahara, wurde die Probennahme - Frequenz erhöht. Dadurch können stärkere Schwankungen der IN-Konzentration während eines solchen Ereignisses besser erfasst werden. Für die Situation des großen Sahara-Staubereignis im Mai 2008 (siehe *Klein et al. [2010]*, bzw. Kapitel 5) gab es dabei eine sehr gute Übereinstimmung zwischen der Staub-Modellierung und den Messergebnissen der Eiskeimkonzentrationen.

Im folgenden Kapitel 2.3. wird der Verlauf der Eiskeimkonzentration über einen Zeitraum von knapp zwei Jahren dargestellt und interpretiert.

Für die Interpretation werden dabei sowohl weitere Messdaten als auch Modellergebnisse im Zusammenhang mit den IN-Konzentrationen diskutiert.

2.3 Interpretation der Messergebnisse

2.3.1 Zeitreihe der IN-Konzentration

Abbildung 2.5 zeigt die Eiskeimkonzentrationen (in Anzahl der Eiskeime pro Liter Luftvolumen) im zeitlichen Verlauf vom 23. April 2008 bis zum 31. März 2010 bei festgelegten Aktivierungsbedingungen: (Aktivierungstemperatur: $T_{akt} = -18^\circ\text{C}$, relative Feuchte in Bezug auf Eis: $RH_{eis} = 119\%$).

Die Maxima der Zeitreihe, die 300 % des jeweiligen Monatsmittelwertes überschreiten, wurden gesondert in Bezug auf die Quellregion des entsprechenden Luftpakets untersucht. Dazu wurden die Ursprungsgebiete der Luftmassen durch Rückwärtstrajektorien (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory, NOAA [Draxler, 1998] für die Termine der Probennahme am Kleinen Feldberg bestimmt.

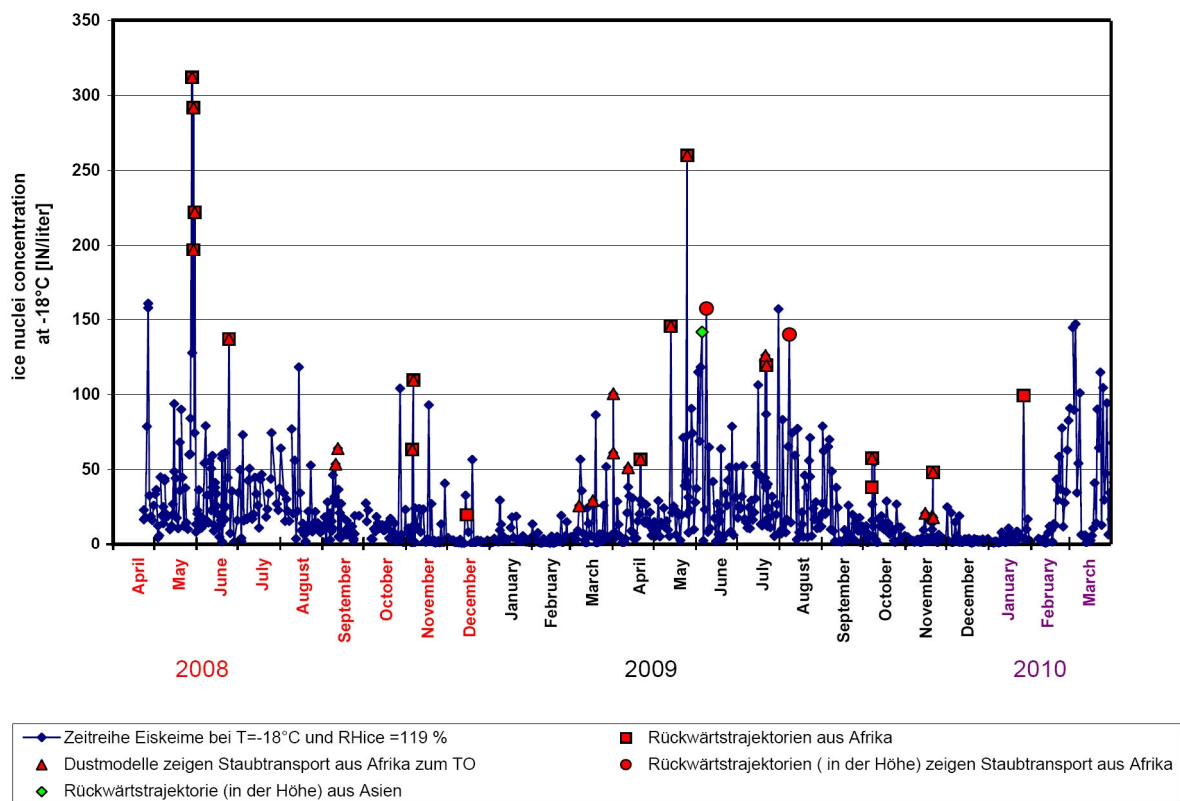


Abbildung 2.5: Zeitreihe der Eiskeimkonzentration (auf Basis tägliche Probenahme (5-30min) am Kleinen Feldberg. Aktivierungsbedingungen $T = -18^\circ\text{C}$ und $RH_{eis} = 119\%$ ($RH_{wasser} = 99, x\%$). Markierungen zeigen Peaks durch Mineralstaubferntransporte zur Messstation

Da mit der Trajektorien-Berechnung die Bewegung von Luftpaketen verfolgt wird, bleibt die Sedimentation der Aerosolpartikel entlang des Transportweges unberücksichtigt. Die Sedimentationsgeschwindigkeit eines Aerosolpartikels ist wie folgt durch die Stokes'sche Reibung definiert:

$$v = \frac{2}{9} \cdot \frac{r^2 \cdot \rho_{\text{aer}} \cdot g}{\eta} \quad (2.1)$$

(Dabei bezeichnet v die Sedimentationsgeschwindigkeit [m/s], r den Partikelradius [m], g die Gravitationsbeschleunigung [m/s²], ρ_{aer} die Dichte des Aerosolpartikels [kg/m³] und η die dynamische Zähigkeit der Luft [kg m⁻¹ s⁻¹])

Bei Aerosolen mit einem Durchmesser kleiner 1 µm muss noch der Korrektionsfaktor von Cunningham berücksichtigt werden)

Für ein Mineralstaubpartikel mit einem Durchmesser von 10µm und $\rho_{\text{aer}} = 2600 \text{ kg/m}^3$ ergibt sich dementsprechend in der Atmosphäre eine Sedimentationsgeschwindigkeit von ca. 30 Meter pro Stunde, während sie bei einem Partikel mit Durchmesser 1µm ungefähr 0,3 Meter pro Stunde beträgt. Ein Partikel mit 100 nm Durchmesser sinkt entsprechend 0,008 Meter pro Stunde. Die Sedimentation spielt somit besonders bei großen Aerosolpartikeln eine wichtige Rolle. Neben der Sedimentation beeinflusst noch die Koagulation von kleinen Partikeln und die nasse Deposition in Verbindung mit Niederschlag die durchschnittlichen Verweilzeit von Aerosolpartikeln in der Atmosphäre. Für Staubpartikel gilt so beispielsweise, das Riesenpartikel ($d > 100 \text{ µm}$) nur eine atmosphärische Verweilzeit von Stunden besitzen, während Partikel in der Größenordnung ($d = 1 \text{ µm}$) mehrere Wochen in der Atmosphäre transportiert werden können [Morales, 1986].

Die Verwendung von Rückwärts-Trajektorien für die Interpretation von Aerosoltransport ist somit eine Annäherung, die nicht gleichermaßen genau für das vollständige Aerosol-Größenspektrum ist, insbesondere für große Partikel ist ein wesentlicher Einfluss der Sedimentation nicht mehr zu vernachlässigen.

Bei der Aerosolprobennahme für die Aufnahme der Eiskeimzeitreihe wurde sich durch die Wahl des Einlasses auf das Aerosolgrößenspektrum bis zu einem Partikeldurchmesser von $d_{\text{max}} \sim 23 \text{ µm}$ beschränkt (siehe Kapitel 5 [Klein et al., 2010]). Die Möglichkeit, sich die Niederschlagsmenge entlang der Rückwärtstrajektorien darstellen zu lassen, wurde bei der Trajektorienbetrachtung dazu verwendet, um Hinweise auf nasse Deposition bei der Interpretation zu berücksichtigen.

Neben Rückwärtstrajektorien sind operationelle Modelle des Mineralstaubtransportes für den Großraum Europa verfügbar. Dies bot die Möglichkeit, Maximalwerte in der Eiskeimzeitreihe daraufhin zu untersuchen, ob Ferntransport aus der Sahara als Ursache in Frage kommt.

So wurden für diese Arbeit die einzelnen Peaks zusätzlich anhand der Karten des Staubtransportes des Euler'schen regionalen Staubtransport-Modells "*Dust REgional Atmospheric Model*" (DREAM; [Nickovic, 2001]) und des „Navy Aerosol Analysis and Prediction System“ (NAAPS) daraufhin geprüft, ob die Modellberechnungen zum Termin der Probenahme einen markanter Staubferntransport (Dustload $DL > 0.25 \text{ g/m}^2$) aus Nordafrika zeigen.

Bei 75 Prozent der Peaks über 100 IN/Liter sind die Luftmassen der entsprechenden Aerosolproben entsprechend den Modellannahmen durch Quellgebiete in Nordafrika direkt beeinflusst. (65 Prozent der Peaks über 30 IN/Liter). Diese Ursprungsgebiete deuten auf einen hohen Anteil von Mineralstaubaerosol aus den dortigen Trockenregionen. In Luftmassen, die sich durch einen hohen Wüstenstaubanteil auszeichnen, wurden in der Vergangenheit in Florida von DeMott [2003] hohe Eiskeimkonzentrationen gemessen. Die vorliegende Messreihe zeigt, dass an 31 von 731 Messtagen eine Erhöhung des Messwertes auf verstärkten Transport von Mineralstaub aus Afrika zurückgeführt werden konnte (siehe Abbildung 2.5).

Abbildung 2.6 zeigt die saisonale Verteilung der identifizierten Peaks. Die meisten dieser Ereignisse fanden im Mai statt, im Februar konnte während der fast zwei jährigen Messreihe kein Peak durch Saharastaubtransport identifiziert werden.

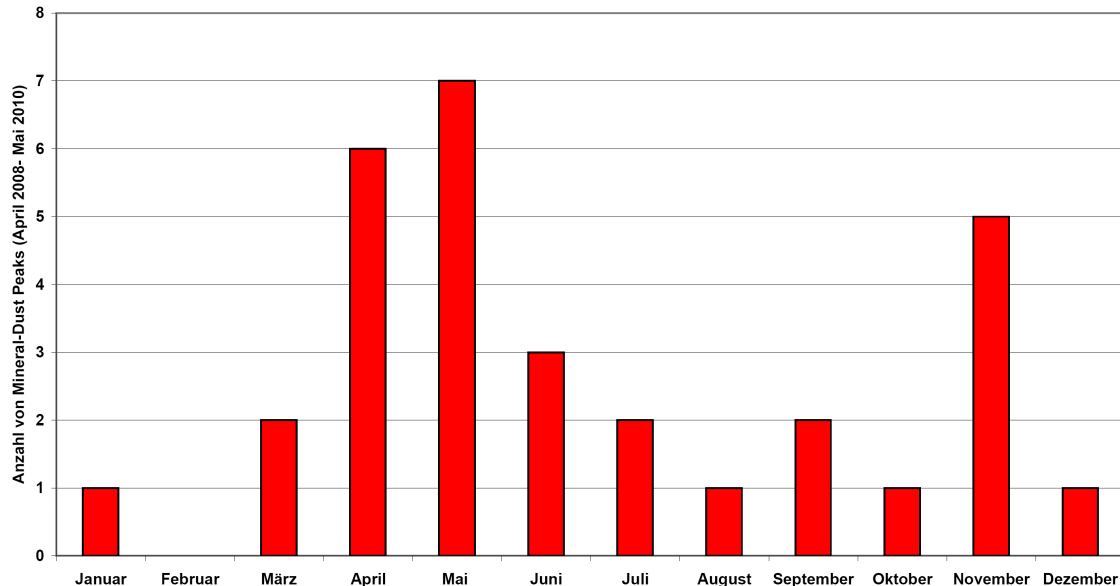


Abbildung: 2.6: Saisonale Häufigkeit der markierten Peaks (Abbildung 2.5) durch erhöhten Mineralstaubfernttransport

Einzelne Maximalwerte, die nicht zeitgleich mit direktem Transport von Luftmassen aus afrikanischen Wüstengebieten zum Messstandort auftreten, bedürfen einer gesonderten Betrachtung:

Bei Konzentrationsmaxima, die zeitliche nahe an Phasen von Saharastaubtransport nach Europa liegen, ist es denkbar, dass auch Filamente des Mineralstaubstransports, die von den Staub-Modellen räumlich nicht mehr aufgelöst werden, die Messstelle erreichen.

Mit dem verwendeten Messverfahren der Vakuumdiffusionskammer FRIDGE [Klein et al., 2009] (Kapitel 4) kann aufgrund der Eiskeimaktivierung alleine keine direkte Aussage über die Zusammensetzung des Aerosols gemacht werden.

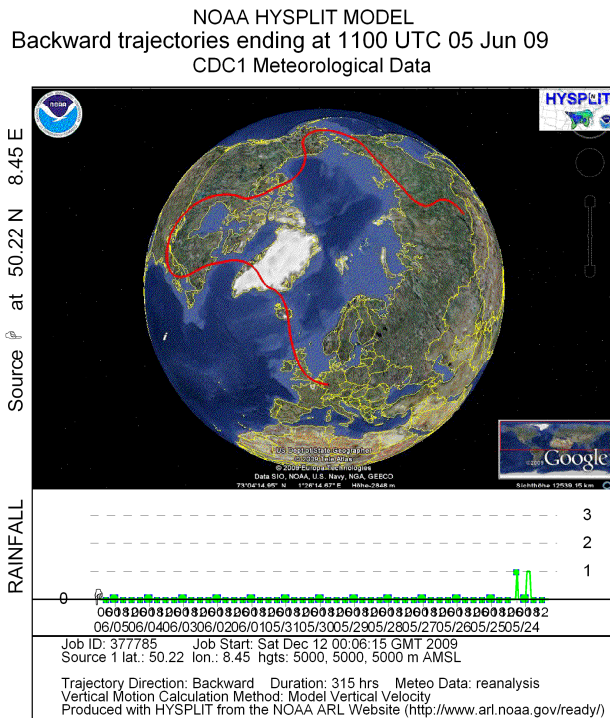
Daher ist nicht sicher, dass alle Peaks in der Messreihe durch mineralische Aerosol-Komponenten verursacht wurden.

Bei dem Maximum am 14.8.2009 ist ein Einfluss lokaler Partikelemissionen auf den Messwert nicht auszuschließen, da in diesem Zeitraum Waldarbeiten im Gebiet um dem Kleinen Feldberg durchgeführt wurden.

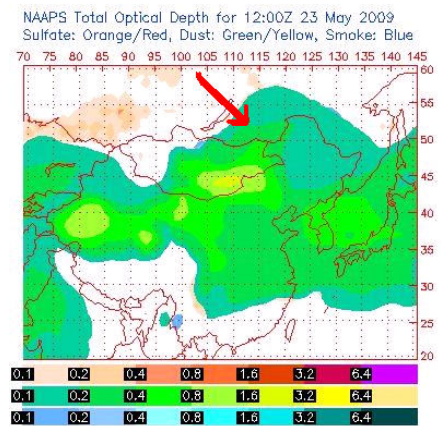
Anhand Analysen mit dem *Environmental Scanning Electron Mikroskop* (ESEM) [Zimmermann et al., 2007] konnte aber bei einer Reihe von ausgewählten Proben ein diesbezüglicher Nachweis geführt werden. Dabei wurden in der Tat vorwiegend mineralische Komponenten auf den Proben mit hohen Eiskeimkonzentrationen gefunden worden [Klein et al., 2010] (Kapitel 5).

Ein interessanter Fall ist das Maximum am 5. Juni 2009. Hier zeigt eine Trajektorienanalyse von 13 Tagen eine Höhenströmung (5000 m) aus einem Ursprungsgebiet in einer aktiven Quellregion der Wüste Gobi (siehe Abbildung 2.7). Ebenso zeigt die Trajektorie, dass es kaum Niederschlagsereignisse im Verlauf gegeben hat.

(a)



b)



c)

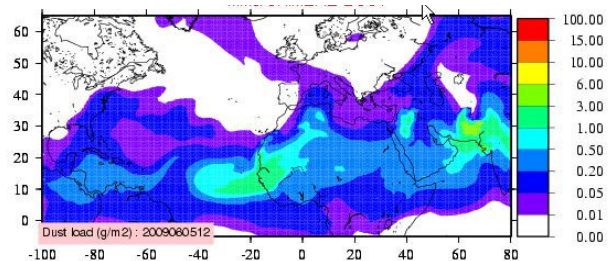


Abbildung 2.7: a) Rückwärtstrajektorie (in der Höhe von 5000 m) (13 Tage) vom 5. Juni 2009
b) Ursprungsgebiet der Trajektorie (roter Pfeil markiert Startpunkt) mit Dust Optical Depth (grün/gelb) zum Anfangstermin der Trajektorie (23. Mai 09) (NAAPS)
c) modellierte Dust-load mit Transportspur von Grönland aus kommend über Europa für den 5. Juni 2009 (CHIMERE-Dust-Model)

F.E. Grousset et al. [2003] analysierten in Frankreich Staubproben, die aufgrund ihrer Zusammensetzung aus Asiatischen Wüsten stammen. Itsushi Uno et al. [2009] zeigten, dass eine Wolke von Mineralstaub aus der Taklamakan Wüste über einen Zeitraum von 15 Tagen in einer Höhenströmung die Nord-Hemisphäre umrundet hat. Es ist möglich, dass Reste asiatischen Wüstenstaubs das Maximum der Eiskeimkonzentration am 5. Juni bewirkt haben. Abbildung 2.8 zeigt Histogramme der IN-Konzentration (Juni bis August in den Jahren 2008/2009) am TO und im Vergleich dazu Messungen in Leon, Nordspanien [Castro et al., 1998]. Dabei wurden in Leon 278 Aerosolproben in den Monaten Juni bis August bei ähnlichen Aktivierungstemperaturen mit einer isothermen Wolkenkammer gemessen. Die Diagramme zeigen die Anzahl der Tageswerte, bei denen die Eiskeimkonzentration in den jeweiligen Größenklassen liegt, wobei die Klassen eine Breite von jeweils 50 IN/Liter besitzen. Auffällig im Vergleich ist, dass in den Messungen am Kleinen Feldberg in deutlich weniger Fällen Konzentrationen von mehr als 150 IN/Liter registriert wurden, als dies in den beiden Jahren in Spanien der Fall war. Eine mögliche Erklärung dafür besteht darin, dass direkter Transport von Wüstenstaub, der wie in Abbildung 2.5 gezeigt wurde in vielen Fällen für hohe Eiskeimkonzentrationen verantwortlich ist, häufiger in Leon/Spanien vorkommt als im Taunus. Dies erklärt sich durch die relative Nähe zu den Hauptquellregionen in der Sahara. Mehrere Veröffentlichungen belegen einen besonders häufigen Transport von Saharastaub nach Südeuropa. [z.B. Lyamani et al., 2005, Mattsson und Nihlen, 1996, Rogora et al., 2004]

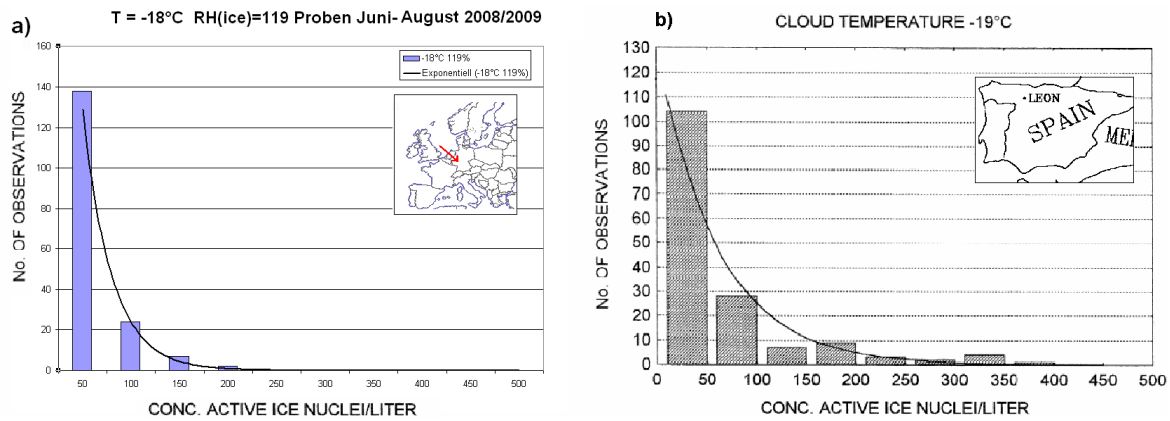


Abbildung 2.8: a) Konzentration aktivierter Eiskeime [IN/l] am Kleinen Feldberg Juni-August (2008/09) und exponentieller Fit (diese Arbeit) b) Konzentration aktivierter Eiskeime in Leon/Spanien Juni-August (1994/95) und exponentieller Fit [Castro et al., 1998]

Im nächsten Unterkapitel wird die Zeitreihe dahingehend untersucht, ob der Einfluss des direkten Umfelds maßgeblich für die gemessenen IN-Konzentrationen ist.

2.3.2 lokaler und regionaler Einfluss

Um zu überprüfen, ob Ferntransport von Aerosol der maßgebliche Einflussfaktor für die Eiskeimkonzentration am kleinen Feldberg ist, oder die Zeitreihe mehr von lokalen Quellen/Senken geprägt wird, werden lokale meteorologische Parameter betrachtet: In Abbildung 2.9 (a) ist die Häufigkeit der vorkommenden Windrichtungen ab April 2008-Ende 2009 basierend auf Daten des Deutschen Wetterdienstes (DWD) (10-min Intervalle) und des Hessischen Landesamtes für Umwelt und Geologie (HLUG) (30-min Intervalle) in einer Windrose aufgetragen. Es dominierte dabei die Anströmung aus westlichen Richtungen. Abbildung 2.9 (b) zeigt die prozentuale Häufigkeit der Windrichtungen während der Zeiten der Probenahmen (April 2008-Ende 2009). Die Zeiten der Probenahme bilden somit in Bezug auf die Anströmungsrichtung insgesamt eine repräsentative Auswahl. (die Anteile sind mit $R^2=0,95$ korreliert, Irrtumswahrscheinlichkeit $\varepsilon = 0,004 \%$).

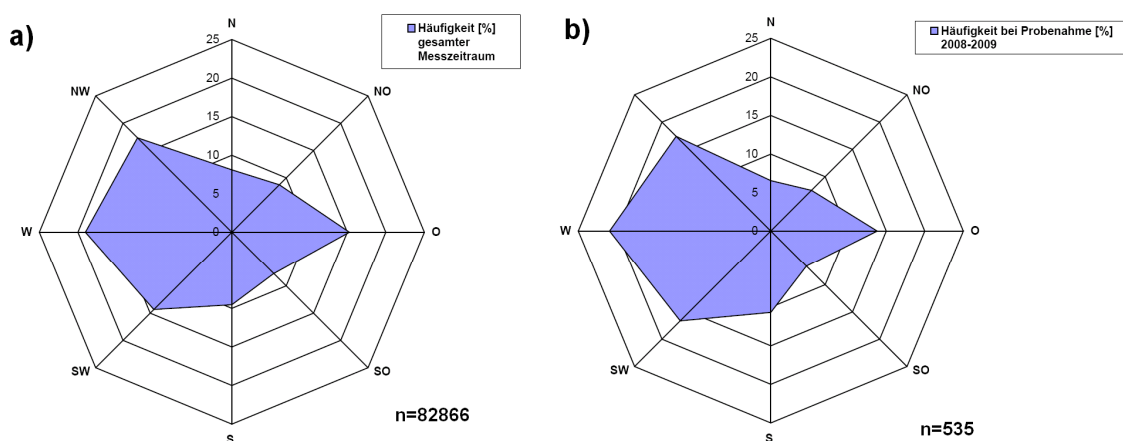


Abbildung 2.9.: Windrosen der Häufigkeitsverteilung [%] der lokalen Windrichtungen am Kleinen Feldberg für (a) Saison April 2008 – Ende 2009 (auf 10 Minuten Basis) (b) Häufigkeitsverteilung für Zeiten der Probenahme (Basierend auf Datensätzen des DWD / HLUG))

Abbildung 2.10 zeigt die mittlere IN-Konzentrationswindrose am Taunus Observatorium in Abhängigkeit von der lokalen Windrichtung: Für diese Berechnung wurden Messwerte des gesamten Mess-Zeitraums berücksichtigt. Die Messwerte bei Saharastaub-Ereignissen sind jedoch bei dieser Betrachtung eher hinderlich. Aufgrund der dabei registrierten extremen Eiskeimkonzentrationen wird das allgemeine Bild verfälscht. Deshalb wurden die Ergebnisse von Konzentrationspeaks, deren Rückwärts-Trajektorien einen direkten Transport aus Afrika zeigten hier nicht miteinbezogen. Das Resultat in Abbildung 2.10 ist fast isotrop, man erkennt nahezu eine Gleichverteilung in Bezug auf die Anströmungsrichtung.

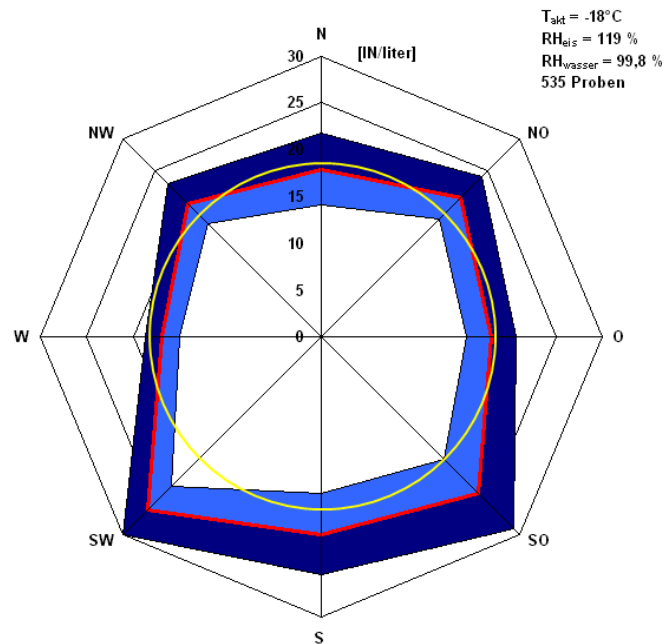


Abbildung 2.10 Eiskeimkonzentration in Abhängigkeit von der lokalen Windrichtung (rot) inklusive Variationsbereich (blau) (Variationsbereich gemäß des Standardfehlers des Mittelwerts $\cdot (\sigma / \sqrt{n})$). Der gelbe Kreis kennzeichnet die Gleichverteilung.

Bei genauerer Betrachtung erkennt man an der Windrose aus Abbildung 2.10, dass nur bei einer süd-westlichen Anströmungsrichtung die Eiskeimkonzentration signifikant erhöht ist.

Es gibt verschiedene Möglichkeiten, diese leichte Erhöhung der mittleren Eiskeimkonzentration am kleinen Feldberg bei süd-westlicher Anströmung zu interpretieren. Prinzipiell wäre es möglich, dass sich regional, vom Taunus-Observatorium in süd-westlicher Richtung eine anthropogene oder natürliche Quellregion für Aerosol befindet, das als Eiskeim wirksam ist. Ebenso ist es jedoch möglich, dass im Mittel der Ferntransport von Aerosol das die Messstation aus süd-westlicher Richtung erreicht eine höhere Eiskeimkonzentration aufweist.

Kaufmann et al. [2005] haben in einer Bilanzierung abgeschätzt, dass ein Anteil des Saharastaubes, der über die afrikanische Westküste auf den Nordatlantik geweht wird, in die Westwindzone und schließlich auf diesem indirekten Wege nach Europa gelangen kann. Dies wird genauer in Kapitel 2.5. ausführlicher dargestellt.

Der vorherrschende lokale Wind am Taunus Observatorium wird sowohl von dem großräumigen Isobarenfeld, als auch von lokalen Einflüssen der Topographie und der solaren Einstrahlung beeinflusst. Wenn man den Verlauf konkreter Rückwärts-Trajektorien verfolgt, zeigt sich erwartungsgemäß, dass die lokale Windrichtung am Zielpunkt in einigen Fällen

nicht identisch mit der großskaligen Strömungsrichtung ist. Es ist im Mittel über 535 Probenstage jedoch verhältnismäßig häufiger zu erwarten, dass Luftpakete, welche mit südwestlichen Ursprung (im Bereich des Nordatlantik) über Frankreich nach Deutschland gelangen, die Messstation mit einem lokalen Süd-West Wind erreichen. Die Eiskeimkonzentration nimmt im Vergleich zur Anzahlkonzentration des Gesamtaerosols in der Regel nur einen Anteil von 0.001% ein (siehe Tabelle 1.1, Kapitel 1.5.1). Daher ist es nicht auszuschließen, dass selbst ein geringer Rest-Anteil von Saharastaub, der auf diesem indirekten Wege die Messstation erreicht die Messwerte der Eiskeimkonzentration und die Konzentrationswindrose nachweisbar beeinflusst.

Abbildung 2.11 zeigt die Windrose der aktivierten Fraktion, bei der die Eiskeimkonzentration anteilig zu der Aerosolpartikelanzahl aller großen Partikel ($d > 0,37 \mu\text{m}$) gegen die Windrichtung aufgetragen wurde. Dazu wurden die mit dem Partikelmessgerät Aerodynamic-Particle-Sizer (APS 3221, TSI Inc.) aufgenommenen Größenspektren verwendet., die zeitgleich zur Probennahme gemessen wurden. Aerosol aus westlichen Richtungen weist dabei deutlich erhöhte Eiskeim-Aktivität im Vergleich zum Aerosol aus östlichen Richtungen aufweist. Minimal sind die Werte aus nördlichen Richtungen.

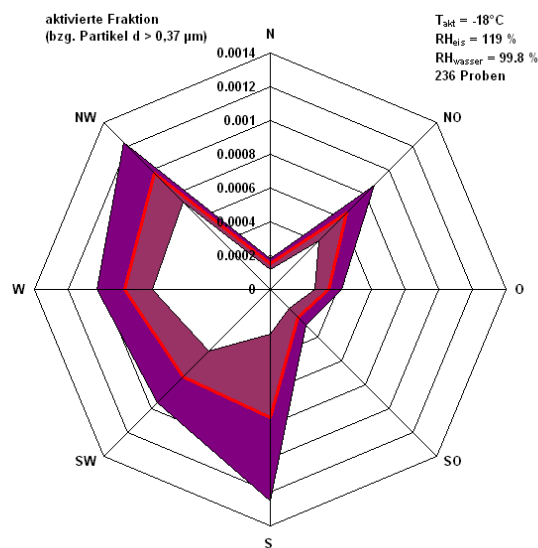


Abbildung 2.11 Aktivierte Fraktion ($d > 0,37 \mu\text{m}$) in Abhängigkeit von der Windrichtung (rot). Die violetten Flächen kennzeichnen den Variationsbereich gemäß des Standardfehlers des Mittelwerts (σ / \sqrt{n}).

Ein verstärkender Einfluss lokaler, anthropogener Quellen aus der südöstlich liegenden Rhein/Main - Region auf die Eiskeimkonzentration kann anhand der Windrosen in den Abbildungen 2.10 / 2.11 dagegen ausgeschlossen werden.

Neben industriellen Quellen, könnten prinzipiell auch Bodenflächen des weiteren Umlandes, durch Staubaufwirbelungen einen signifikanten Einfluss auf die Eiskeimkonzentration an der Station Kleiner Feldberg besitzen.

In diesem Fall müsste die Feuchtigkeit des Bodens im Umland und die Windgeschwindigkeit einen entscheidenden Einfluss auf die Messdaten besitzen. Die Mittelgebirgsregion, die den Kleinen Feldberg umgibt zeichnet sich durch einen hohen Anteil an Fläche mit Bewaldung aus,

die als Flächen für eine verstärkte Aufwirbelung von Bodenstäuben weniger in Frage kommen. Aus diesem Grund ist es sinnvoll, auch das weitere Umfeld in Betracht zu ziehen. Insbesondere landwirtschaftliche Nutzflächen, z.B. Felder, deren Ackerkrume nicht stark bepflanzt ist, sowie der im Umfeld gelegene Steinbruch des Taunus-Quarzits (bezüglich des Minerals handelt es sich dabei um *quarzitische Sandsteine*) könnten prinzipiell als dominante lokale Bodenquellen eine Rolle spielen.

Um diese Fragestellung zu klären, wurden Daten der Bodenfeuchte des „Global Land Data Assimilation System“ (GLDAS, System zur Anpassung globaler Bodendatensätze) für die obersten Bodenschichten (in 0-1 cm Tiefe) in der weiteren Region um den Kleinen Feldberg verwendet. Dabei handelt es sich um modellierte Daten der Bodenfeuchte, die auf gemessenen Niederschlagsmengen (von Messstationen, Niederschlagsradar-Instrumenten) basieren. Für die Berechnung der Bodenfeuchte wird dann die Vegetation der Erdoberfläche berücksichtigt (über ein sogenanntes Transfer-Schema zwischen Vegetations-Oberflächen und Atmosphäre - *Surface Vegetation Atmosphere Transfer Schemes (SVATS)*). Hierzu kommen auch Satellitendaten zum Einsatz.

Für die Zeitreihe der Eiskeim-Messungen wurde für die vorliegende Arbeit der Einfluss von Bodenaufwirbelungen indirekt in einer Korrelationsprüfung untersucht.

Für die Mobilisierung von Staubpartikeln vom Boden muss die herrschende Schubspannungsgeschwindigkeit einen jeweiligen Grenzwert überschreiten, der neben der Partikelgröße insbesondere von der Bodenfeuchte abhängig ist. Eine höhere Bodenfeuchte reduziert somit den Anteil des in die Atmosphäre getragenen Staubs [Nickovic, 2001].

Wäre die vorliegende Zeitreihe von regionaler Staubaufwirbelung dominiert, so wäre eine signifikante negative Korrelation der Bodenfeuchte auf die Eiskeimkonzentration zu erwarten. Die Analyse ergibt jedoch für den gesamten Zeitraum keine signifikante Korrelation ($R^2=0,07$, $n=627$). Auch die Monatsmittelwerte über einen Jahreszeitraum widersprechen dieser Möglichkeit, da ebenfalls keine negative Korrelation festgestellt wird ($R^2=0,35$, $n=12$) (siehe Abbildung 2.12).

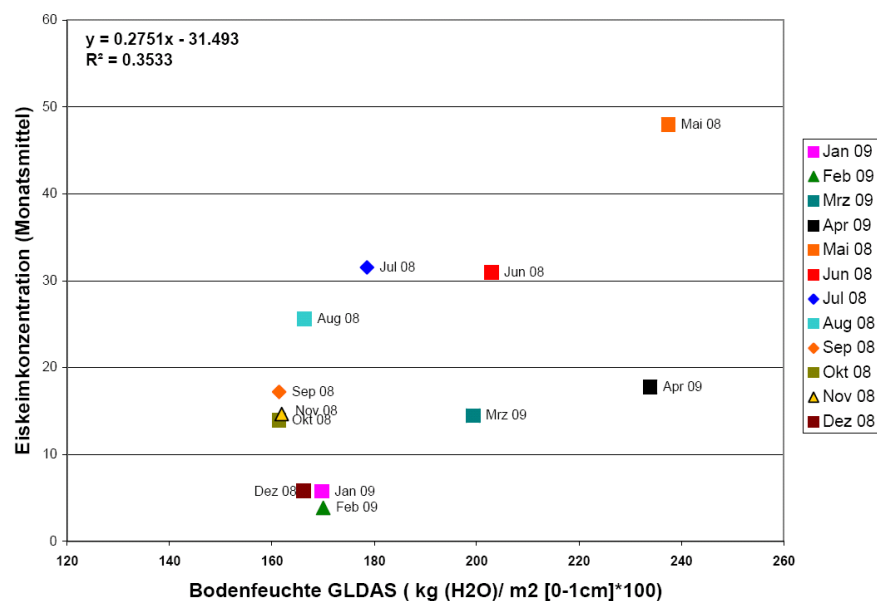


Abbildung 2.12: Streudiagramm der Eiskeimkonzentrationen [IN/Liter] (Monatsmittelwerte bei -18°C 119%) gegen die Monatsmittelwerte der Bodenfeuchte (Global Land Data Assimilation System) in der Taunusregion für den Verlauf eines Jahres

Die Korrelation der Einzelmessung der Eiskeimkonzentration zur Windgeschwindigkeit ergibt ebenfalls einen sehr geringen Korrelationskoeffizienten ($R^2=0,0177$, $n=650$, $\varepsilon= 0,07\%$) und eine negative Steigung, die gegen die Hypothese spricht.

(Die Zeiten mit Bedeckung der Landoberflächen durch Schnee wurden bei diesen Korrelationsanalysen nicht explizit gesondert betrachtet. Im Winter kann Schneebedeckung und Frost/Eisbildung der oberen Bodenschichten offensichtlich dazu führen, dass der erwähnte Zusammenhang zwischen Bodenfeuchte und Mobilisierung von Staubpartikeln [Nickovic, 2001] dann nicht in gleicher Weise angenommen werden kann

Daher wurde der Datensatz nochmals ohne die Daten der Wintermonate Dezember, Januar und Februar betrachtet. Jedoch führt die Korrelationsanalyse dieses verminderten Datensatzes ebenfalls zu dem Ergebnis, dass der Verlauf der Eiskeimkonzentration am Kleinen Feldberg nicht von der regionalen Staubaufwirbelung dominiert ist.)

Eine verstärkte Eiskeimkonzentration durch regionale Staubaufwirbelung ist demnach nicht zu erwarten.

Zur Behandlung der Frage nach lokalen Einflussgrößen auf die Messergebnisse gehört ebenfalls eine Untersuchung, ob die Eiskeimkonzentration mit lokalen meteorologischen Parametern korreliert.

Zur Untersuchung dieser Frage wurden die an der Station gemessenen meteorologischen Messgrößen (Windgeschwindigkeit, Solarstrahlung, Bedeckungsgrad, Feuchte, Temperatur) in Korrelationsanalysen in Bezug auf die lokale Eiskeimkonzentrationen untersucht, es ergaben sich jedoch in Bezug auf die Einzelmessungen über den gesamten Zeitverlauf keine Korrelationen mit signifikanten Korrelationskoeffizienten. Dagegen zeigen die Korrelationen mit Mineralstaubparametern (siehe Kapitel 2.4, Abbildungen 2.19 und 2.21) deutlich ausgeprägte Korrelationen.

Betrachtet man die Monatsmittelwerte der Temperatur und Luftfeuchte am Messstandort, weisen die entsprechenden Jahresgänge ebenfalls Korrelationen zu den mittleren Eiskeimkonzentrationen. Es ist jedoch unsicher und war anhand der Datenlage nicht abschließend zu klären, ob diese Korrelationen wirklich auf ursächliche Zusammenhänge hindeuten, da sich diese Korrelationen nicht in den Einzelmessungen bestätigen.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit werden diese Ergebnisse daher nicht weiter interpretiert.

2.3.3 Wochengang der Eiskeimkonzentration / Anthropogener Einfluss

Bäumer und Vogel [2007] führten eine Analyse von Datensätzen Aerosol-optischer Dicke (AOT_{Gesamt}) verschiedener deutscher Städte durch. Ihr Ziel bestand dabei darin, zu untersuchen, ob es einen statistisch signifikanten Wochengang innerhalb dieser Messreihen gibt, der durch regionalen anthropogenen Einfluss erklärt werden könnte. Dazu verwendeten sie die Daten von 14 Stationen des Sonnenphotometer – Netzwerkes AERONET (*Aerosol Robotic Network*) bei einer Wellenlänge von 440 nm. Sie kommen zu dem Ergebnis das 12 der 14 Stationen ausgeprägte Wochengänge mit einem Signifikanzniveau von insgesamt mind. 90% aufweisen, mit minimalen Werten am Sonntag und Montag und Maximalen Werten von Mittwoch bis Samstag. Abbildung 2.13 zeigt die Wochengänge für 5 Stationen und den mittleren Wochengang als prozentuelle Abweichung vom Mittelwert. Eine entsprechende Untersuchung für die Eiskeimkonzentrationen ist ebenfalls interessant, da ein anthropogener Einfluss einerseits zu Anlagerungen von Spezies auf Partikeloberflächen führen könnte, oder durch anthropogenes Aerosol selber zur Eiskeimkonzentration beitragen könnte. Es ist deshalb gleichermaßen ein positiver, wie ein negativer Einfluss (durch Deaktivierung aktiver Stellen) von anthropogenen Substanzen auf die Eiskeimkonzentration denkbar.

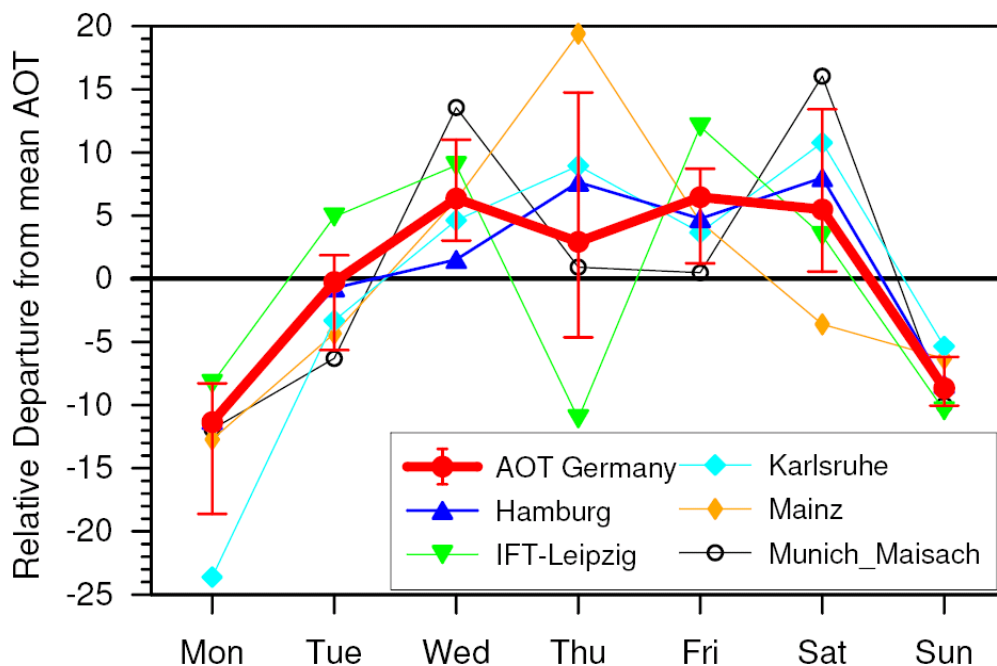


Abbildung 2.13 Wochengang der langjährigen Aerosol Optical Thickness (AOD) für 5 Stationen in Deutschland und den mittleren Wochengang für Deutschland. Dargestellt ist die prozentuale Abweichung an den Wochentagen zum Gesamtmittelwert (Quelle: [Bäumer und Vogel, 2007])

In Abbildung 2.14 ist der Wochengang der Eiskeimkonzentration am kleinen Feldberg basierend auf der 2-jährigen Messreihe dargestellt (April 2008 –März 2010, Daten von n=600 Tagen). Dabei wurden Episoden, die nachweislich durch direkten Staubtransport aus Afrika beeinflusst sind, von den Daten ausgenommen.

Der Wochengang zeigt innerhalb der Fehlerbereiche der Mittelwerte einen durchschnittlichen Verlauf um Werte von ca. 20 IN/Liter, wobei der Mittelwert von Samstag mit 24,6 \pm 3,2 IN/Liter (n=86) signifikant höher liegt als der Mittelwert von Montag 17,4 \pm 2,1 IN/Liter (n=84). Dagegen weisen die anderen Wochentage keine signifikanten Unterschiede in den IN-Konzentrationen auf

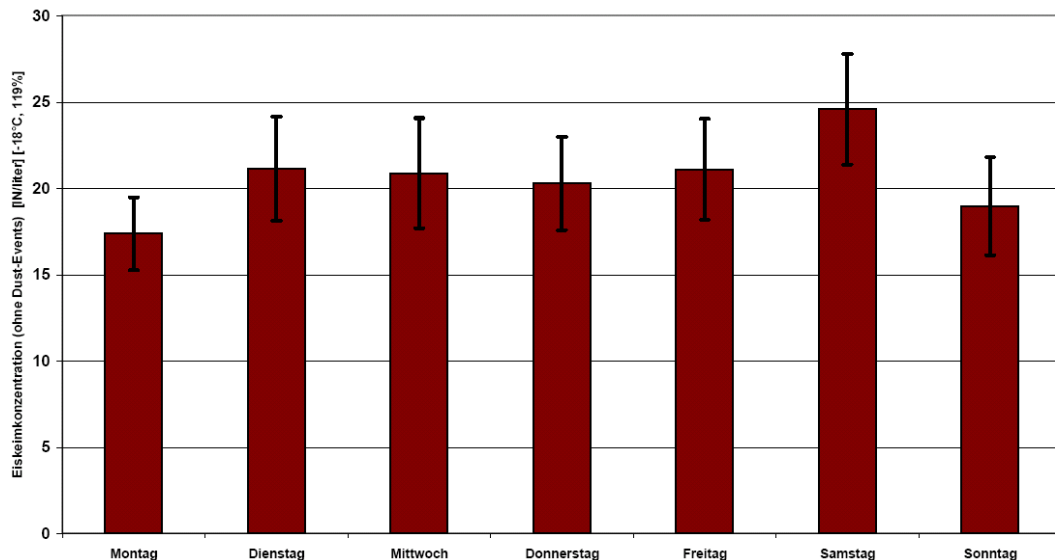


Abbildung 2.14 Wochengang der Eiskeimkonzentration über die 2 Jahres-Zeitreihe, wobei Messtage mit direkten Saharastaub-Transport von der Mittelung ausgeschlossen wurden (n =600). Fehlerbalken entsprechen der Variation, berechnet gemäß des Standardfehlers des Mittelwerts (σ / \sqrt{n}).

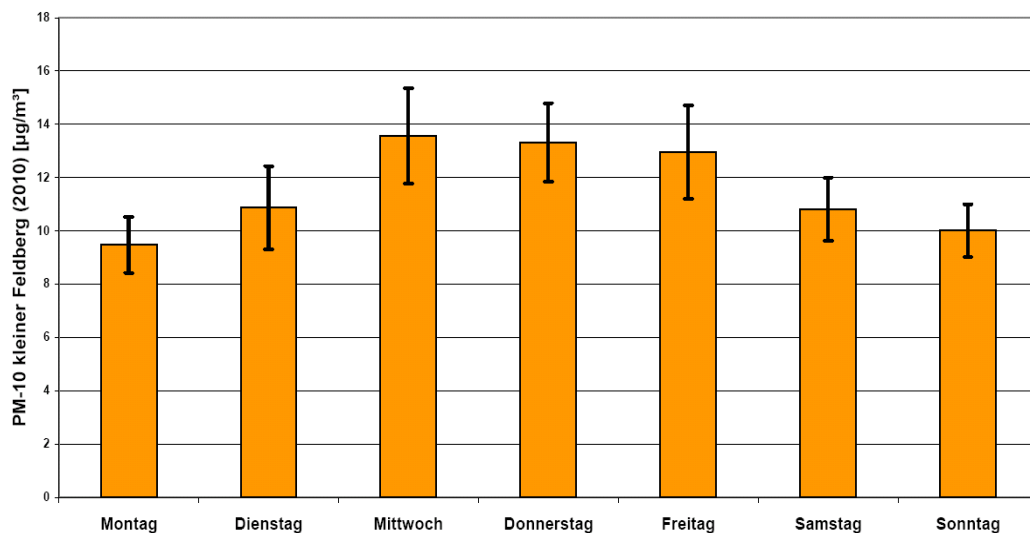


Abbildung 2.15 Wochengang der PM-10 Konzentration an der Station Kleiner Feldberg (basierend auf Tagesmittelwerten von Januar bis Juni 2010) Datenquelle: Hessisches Landesamt für Umwelt und Geologie (HLUG). Fehlerb). Fehlerbalken entsprechen der Variation, berechnet gemäß des Standardfehlers des Mittelwerts (σ / \sqrt{n}).

Das Maximum und Minimum des Wochengangs der Eiskeimkonzentration liegt somit in den entsprechenden Bereichen in denen von *Bäumer und Vogel* [2007] Minima, bzw. Maxima gefunden wurden. Ein Vergleich mit der nahe liegenden Station Mainz (orange Rauten in Abbildung 2.13) zeigt jedoch hier maximale AOT_{Gesamt} Werte nicht samstags, sondern donnerstags.

Abbildung 2.15 zeigt im Vergleich zu Abbildung 2.13 den mittleren Wochengang von PM-10 an der Station kleiner Feldberg (basierend auf Messwerten aus dem Jahr 2010; $n=178$). Es zeigt sich ebenfalls ein Minimum am Montag, das Maximum liegt jedoch (ähnlich wie bei $AOT_{\text{Gesamt}}(\text{Mainz})$) in der Wochenmitte. Entsprechend ist auch der zugehörige Korrelationskoeffizient zur IN-Konzentration gering ($R^2=0,09$, $n=7$, $\varepsilon=51\%$).

Die Eiskeimkonzentration am kleinen Feldberg weist somit einen Wochengang auf, der sich jedoch in der Lage des Maximum von dem Wochengang des Gesamtaerosols (in PM_{10} und AOT_{Gesamt}) unterscheidet.

Abbildung 2.16 zeigt den mittleren Wochengang der langjährigen Datenreihen der Aerosolmassen an der Station Hohenpeißenberg (Montag bis Montag). Die Mittelwerte und Mediane umfassen die zehn Jahre von 1998-2007 und weisen Minima an den Tagen Sonntag und Montag und Maxima in der zweiten Wochenhälfte (Donnerstag bis Samstag) auf.

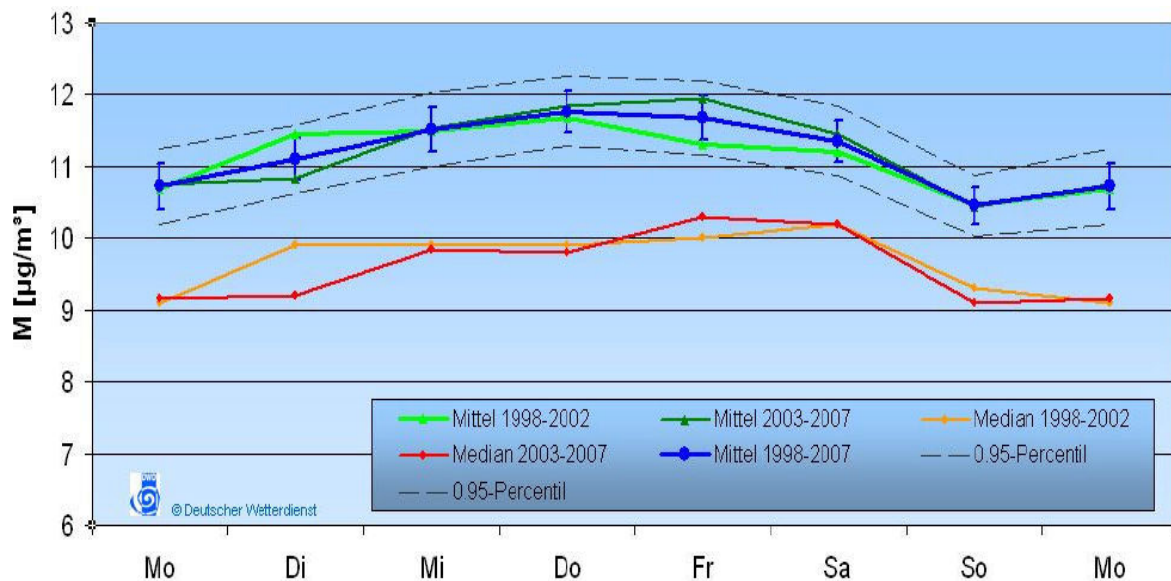


Abbildung 2.16 Mittlerer Wochengang der Aerosolmassen am Observatorium Hohenpeißenberg basierend auf unterschiedlichen Zeiträumen von 1998 bis 2007. (Quelle: [Flentje et al., 2008])

Bäumer und Vogel [2007] interpretieren die Ergebnisse der signifikanten Wochengänge anhand von Emissionsmodellaten für Aerosolen und Aerosolvorläufer-Substanzen (GENEMIS [Friedrich and Reis, 2004]). Sie schließen in ihrer Studie auf einen möglichen anthropogenen Einfluss auf das Aerosol, der sich in dem Wochengang von AOT_{Gesamt} niederschlägt.

Im Gegensatz dazu weisen die Zeitreihen der Stationen Zürich und Lugano zwar periodische Signale auf, diese liegen aber nicht in gleicher Phase mit den Wochentagen der Daten von

Bäumer und Vogel, wenn der Auswertzeitraum entsprechend in die Vergangenheit verlängert wird [Franssen, 2008].

Aufgrund dieser widersprechenden Ergebnisse kommen Flentje *et al.* [2008] zu dem Schluss dass die gefundenen Zusammenhänge bislang noch nicht abschließend auf einen anthropogenen Einfluss hin bewertet werden können.

Von den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit in Bezug auf Eiskeimkonzentrationen, ist ein anthropogener zusätzlicher Einfluss auf die Eiskeimkonzentrationen nicht generell auszuschließen. Eine diesbezügliche Interpretation des Wochengangs bedarf jedoch weiterer Studien, und konnte anhand der vorliegenden Datensätze nicht abschließend geklärt werden.

2.4 Jahrgang der Eiskeimkonzentration / Ferntransport

In Kapitel 2.3. wurden die Ergebnisse der täglichen Eiskeimmessungen am kleinen Feldberg bereits als Zeitreihe dargestellt (siehe Abbildung 2.5), Bei der Interpretation wurden insbesondere die Maximalwerte der Konzentration beachtet und im Zusammenhang mit Mineralstaubferntransport diskutiert.

Die in Rahmen dieser Arbeit erstellte Datenbasis liefert darüber hinaus sehr gute Möglichkeiten zu weiteren Untersuchung der Eiskeimkonzentration im Jahrgang,

Trägt man die Daten der Zeitreihe vom Kleinen Feldberg gegen eine Konzentrationsachse in logarithmischen Maßstab auf (Abb. 2.17), so zeigt sich sehr deutlich, dass neben den großen Fluktuationen, die bei Proben von aufeinander folgenden Tagen auftreten können, ein jahreszeitlicher Verlauf der Eiskeimkonzentration vorliegt, mit hohen Werten im Frühjahr/Frühsummer und minimalen Werten im Winter.

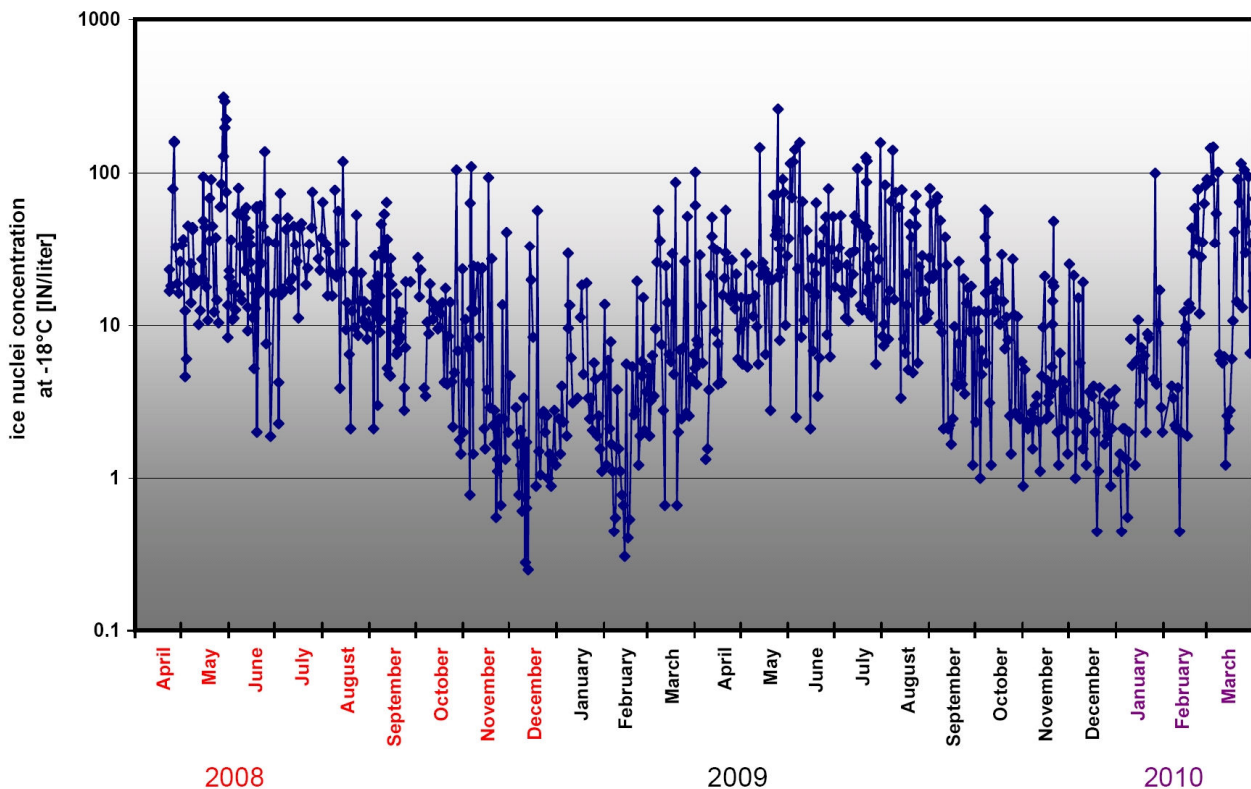


Abbildung 2.17: logarithmische Darstellung der Eiskeimzeitreihe am kleinen Feldberg ($T_{akt} = -18^{\circ}\text{C}$; $RH_{Eis} = 119\%$)

Villars Saint Pancrace (44.90°N, 6.65°E)

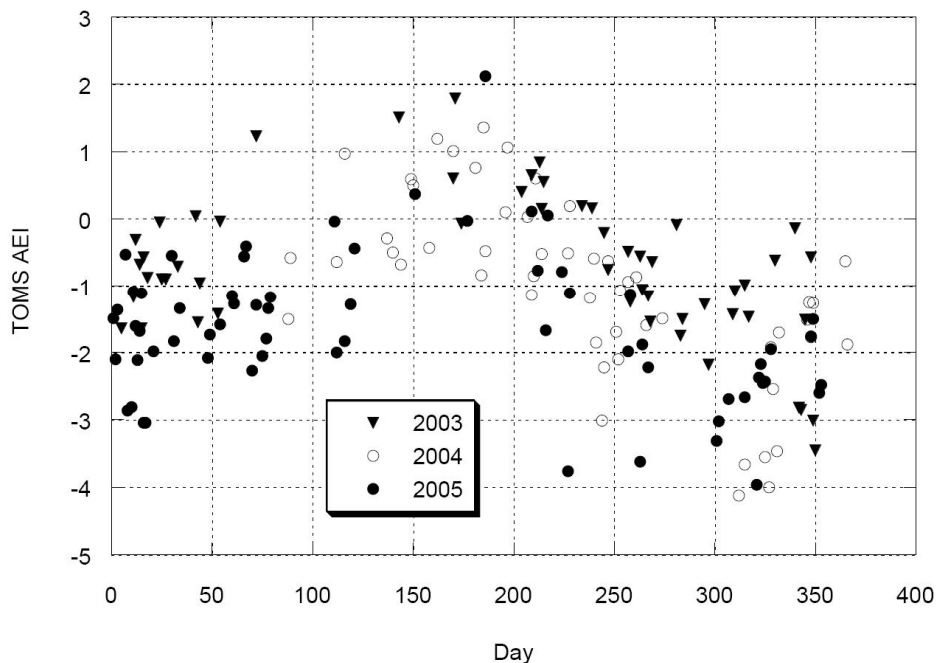


Abbildung 2.18: TOMS Aerosol Index in Villars Saint Pancrace (franz. Alpen) für wolkenfreie Tage in 2003, 2004, 2005 (nach Lenoble et al., 2008)

Zum Vergleich ist in Abbildung 2.18 der Jahresgang des Aerosol Index in den südlichen Französischen Alpen dargestellt (Lenoble et al., 2008). Der Jahresgang weist einen ähnlichen Verlauf auf, wie die Ergebnisse der Eiskeimmessungen. Die Autoren vermuten, dass der Ferntransport von Saharastaub über das Mittelmeer einen Einfluss auf die Maximalwerte im Jahresgang haben könnte. Im Kapitel 2.5.4 wird gezeigt (Abbildung 2.26), dass die Auftragung des TOMS Aerosol Index im Vergleich mit den modellierten Staubkonzentrationen die globalen Verteilungen von Mineralstaub sehr ähnlich wiedergibt. Weitere Studien belegen einen Zusammenhang zwischen dem TOMS Aerosol Index und dem lokalen Mineralstaubkonzentrationen [Alpert et al., 2002].

Anhand der Aerosol optischen Dicke von Mineralstaub (AOD_{Dust}) kann die IN-Konzentration direkt mit dem lokalen Mineralstaubvorkommen verglichen werden.

Die optische Dicke ist ein Maß für die Transmissivität der Atmosphäre und setzt sich aus der Gas-optischen Dicke und der Aerosol-optischen Dicke zusammen. Anhand von Messungen bei verschiedenen Wellenlängen kann die Aerosol optische Dicke, deren Betrag insbesondere von der Mie-Streuung an Aerosolpartikeln bestimmt wird, durch Aerosol Invertierungs-Rechnungen in weitere Anteile zerlegt werden. So wird unter anderem in den Datensätzen des Sonnenphotometer-Netzwerkes AERONET (AEROSol RObotic NETwork) für einzelne Termine die Aerosol-optische-Dicke für groben Mineralstaub (AOD_{Dust}) berechnet.

Abbildung 2.19 zeigt die verfügbaren Daten von AOD_{Dust} der nächstliegenden Station des Sonnenphotometer-Netzwerkes AERONET in Mainz (in einer räumlichen Entfernung zum Kleinen Feldberg von $\Delta r < 30$ km). Dabei wurden nur Daten verwendet, die mit zeitlicher Übereinstimmung von ($\Delta t < 1$ h) im Verlauf der Zeitreihe zum Termin der Probennahme vorlagen. Dabei wurden die Werte von AOD_{Dust} in Abbildung 2.19 gegen eine logarithmische Skala aufgetragen. Die Eiskeimkonzentrationen der jeweils simultan genommenen Proben wurden in entsprechender Weise ebenfalls mit logarithmischer Ordinate aufgetragen.

Die signifikante Korrelation zwischen den Werten von AOD_{Dust} (Station Mainz) und den IN-Konzentrationen am Kleinen Feldberg ($R^2=0,7$, $n=26$, $\varepsilon = 1,01 \cdot 10^{-5} \%$) ist eine Bestätigung dafür, dass das Mineralstaubvorkommen ein geeigneter Proxy für die Eiskeimkonzentration in der Atmosphäre sein könnte.

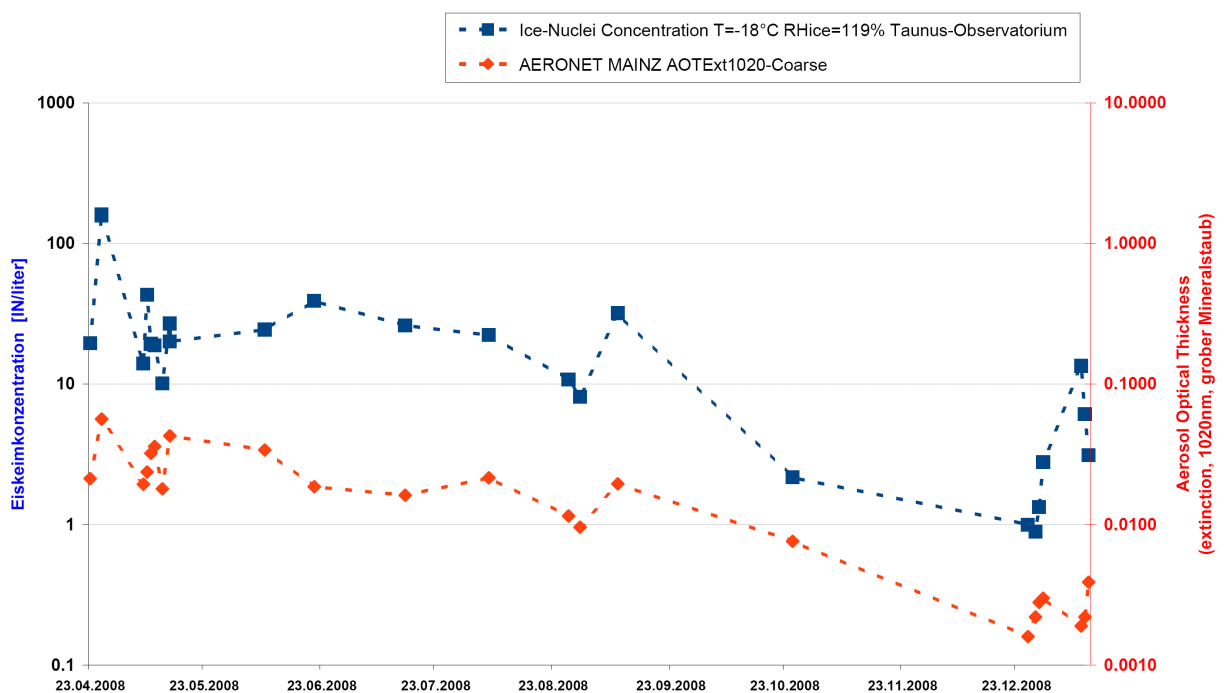


Abbildung 2.19: Gegenüberstellung von Einzelwerten (logarithmische Ordinaten) der Eiskeimkonzentration (blau) und simultanen ($\Delta T < 1h$) von AOD_{Dust} (rot) - bestimmt anhand Aeronet-Sonnenphotometer Messungen in Mainz (Andreae,2010)

In Abbildung 2.20 sind die Eiskeimdaten in Form von Monatsmittelwerten bei den Aktivierungstemperaturen $T_{akt} = -18^\circ\text{C}$, $T_{akt} = -13^\circ\text{C}$ und $T_{akt} = -8^\circ\text{C}$ aufgetragen.

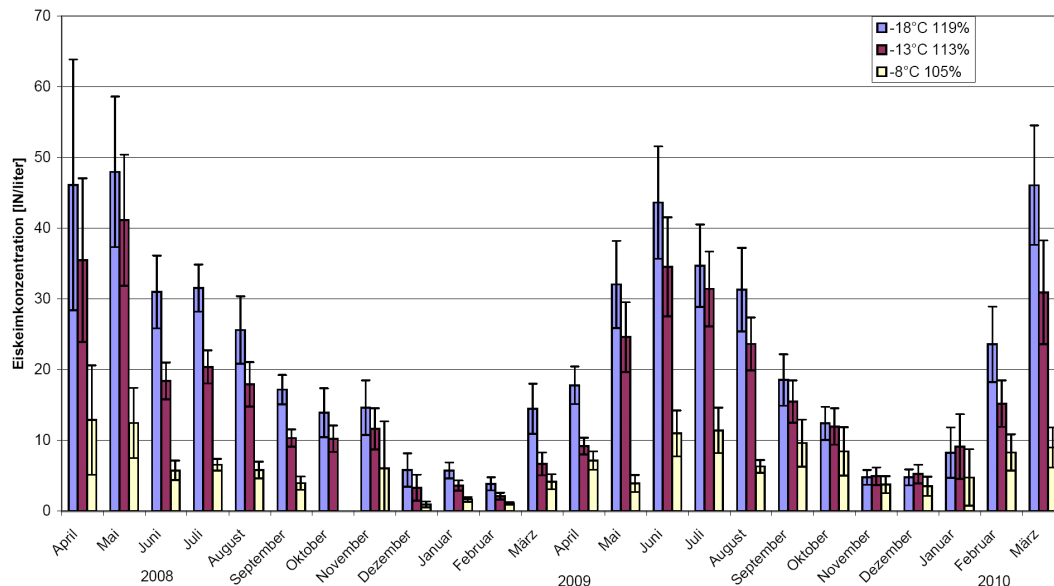


Abbildung 2.20: Monatsmittelwerte der Eiskeimkonzentrationen am Kleinen Feldberg bei verschiedenen Aktivierungsbedingungen, berechnet anhand der Daten der täglichen Probenahme. Die Fehlerbalken entsprechen der Variation, berechnet gemäß des Standardfehlers des Mittelwerts (σ/\sqrt{n}). Aktivierungsbedingungen: blau: ($T_{akt} = -18^\circ\text{C}$, $RH_{Eis} = 119\%$) rot: ($T_{akt} = 13^\circ\text{C}$, $RH_{Eis} = 113\%$) weiß: ($T_{akt} = -8^\circ\text{C}$, $RH_{Eis} = 105\%$)

Aus den Monatsmittelwerten der Eiskeimkonzentration am Kleinen Feldberg ergibt sich ein deutlicher Jahresgang, mit maximalen Werten im Frühjahr/Sommer, die bei $T_{akt} = -18^\circ\text{C}$ um einen Faktor von ca. 10 höher liegen als im Winterminimum.

Aus den Monatsmittelwerten wurde ein mittlerer Jahresgang der Eiskeimkonzentration (aus den Jahren 2008 und 2009) berechnet, um die Daten mit langjährigen Werten von AOD_{Dust} zu vergleichen.

So sind in Abbildung 2.21 die monatlichen Eiskeimkonzentrationen den jeweiligen AOD_{Dust} Konzentrationen gegenübergestellt

Zum einen wurde dazu ein Datensatz verwendet, der als repräsentativer modellierter Jahresgang von AOD_{Dust} auf monatlicher Basis in einer horizontalen Gitterauflösung von $0,5^\circ$ Länge * $0,5^\circ$ Breite vorliegt. Dieser Datensatz ist von der Datenbank des Satelliteninstruments MISR (Multi-angle Imaging Spectro Radiometer, Radiospektrometer mit mehreren Beobachtungswinkeln zur Erde) verfügbar.

Gezeigt wird der Verlauf für den nächstliegenden Gitterpunkt (50°N , 8°E) zum Kleinen Feldberg. Die Korrelation der Monatswerte weist einen signifikanten Zusammenhang auf ($R^2 > 0.9$; $n=12$; $\varepsilon = 0,000256\%$).

Zusätzlich wurden Monatsmittelwerte aus allen verfügbaren AERONET-Daten von AOD_{Dust} der Station Mainz für die Jahre 2003-2009 gebildet und ebenfalls in Abbildung 2.21 dargestellt. Der Korrelationskoeffizient beträgt für diese Daten ($R^2 = 0,7$, $n=12$, $\varepsilon = 0,06913$)

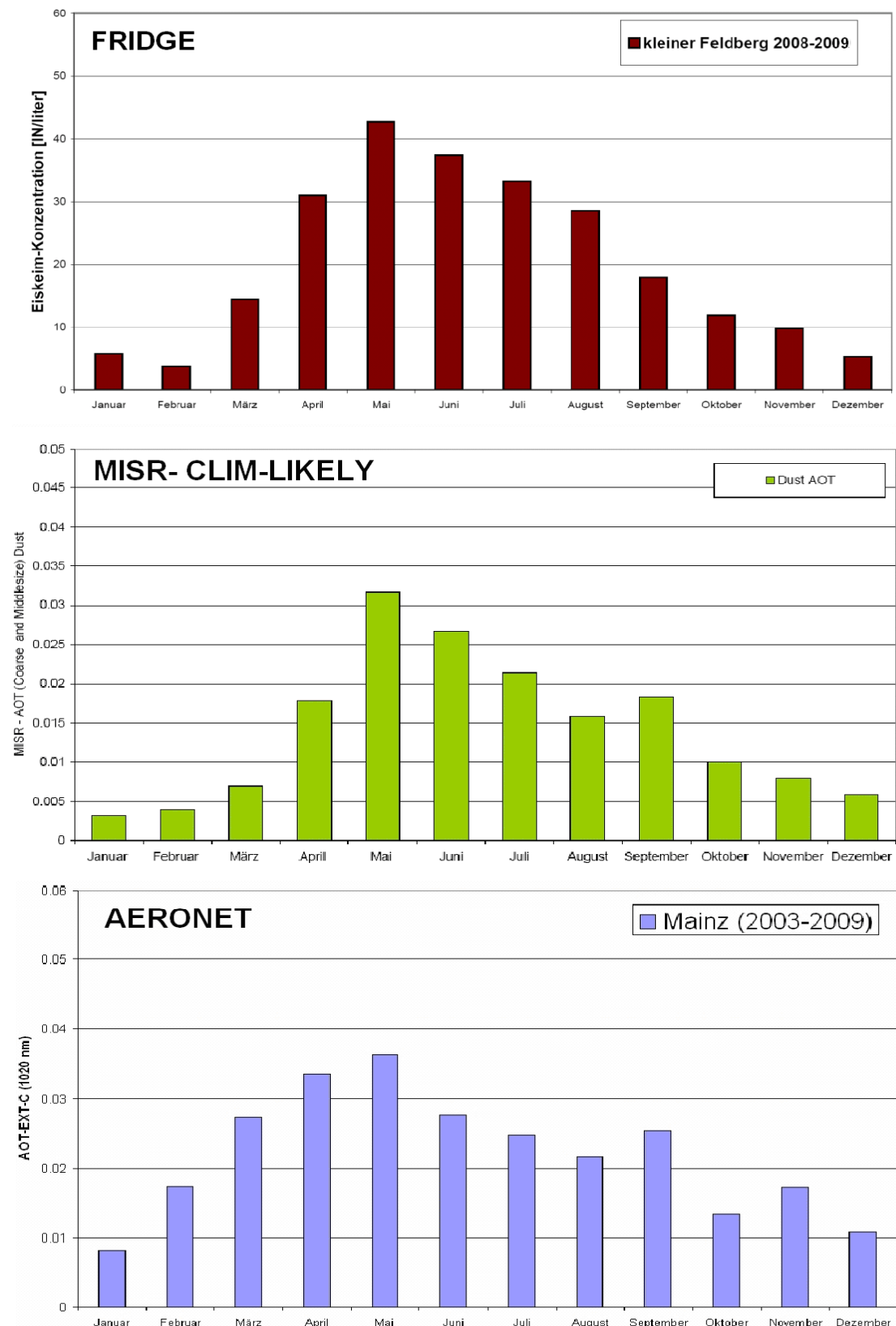


Abbildung 2.21: (FRIDGE) mittlerer Jahresgang der Eiskeimkonzentration am kleinen Feldberg (50,2°N 8,45°E) (2008-2009) (-18°C / 119%).
(MISR) Klimatologischer Jahresgang von AOD_{Dust} für 50°N 8 °E (NASA,2010)
(AERONET) Mittler Jahresgang von $AOD_{Dust-Coarse}$ für Mainz (50°N, 8,3°E)
bestimmt anhand allen verfügbaren Daten von 2003-2009

Die Ergebnisse geben somit einen deutlichen Hinweis darauf, dass im Verlauf der Zeitreihe Mineralstaubaerosol aus dem Ferntransport als der dominierende Einflussfaktor für die atmosphärische Eiskeimkonzentration zu betrachten ist.

2.5. Mineralstaub

Das weltweit größte Quellgebiet für Mineralstaubaerosol liegt im Norden des afrikanischen Kontinents in der Sahara. Die jährliche Staubmasse, die von dieser gesamten Region in die Atmosphäre gelangt, liegt im Bereich von $400\text{--}700 \times 10^6$ Tonnen [Schütz *et al.*, 1981, Swap *et al.*, 1996, D'Almeida, 1987].

Die feine Fraktion von Saharastaub, die für den Ferntransport ausschlaggebend ist, hat einen hohen Anteil an Tonmineralen wie Palygorskit, Illit und Kaolinit [Goudie and Middleton (Ch.2.2), 2006, Alastuey *et al.*, 2005]. Die jeweilige Zusammensetzung und die optischen Eigenschaften können nach der genauen Herkunftsregion variieren. [Goudie and Middleton, 2006; Formenti *et al.*, 2011]. Betrachtet man die molekulare Zusammensetzung besteht Saharastaub hauptsächlich aus den Komponenten Siliziumoxid (SiO_2) und Aluminiumoxid (Al_2O_3) sowie einigen Anteilen an Magnesium-Oxid (MgO), Eisenoxid (Fe_2O_3) und Kalziumoxid (CaO) [Tomadin *et al.*, 1984; Goudie and Middleton (Ch.2.2), 2006].

2.5.1 Eiskeimfähigkeit

Die guten Eiskeimeigenschaften von Silikaten und vielen Tonmineralen sind bekannt [Mason, 1958; Zobrist, 2007]. Die Eiskeimfähigkeiten von MgO und Fe_2O_3 wurden kürzlich an der Forschungsanlage AIDA im Detail untersucht. [Saunders *et al.*, 2010].

Betrachtet man die durchschnittliche chemische Zusammensetzung des Aerosols am Kleinen Feldberg (Abbildung 2.2 und Abbildung 2.3) wird ersichtlich, dass diese Komponenten am kleinen Feldberg vorkommen. Dabei liegen sie teilweise in untergeordneten Massenanteilen des Gesamtaerosols vor. Trotzdem ist es möglich, dass sie die Eiskeimanzahl dominieren, bedenkt man den äußerst geringen Eiskeimanteil am Gesamtaerosol (Tabelle 1.1, Kapitel 1.5.1)

2.5.2 Einfluss auf Niederschlag

Der Einfluss von Wüstenstaub auf den Niederschlag wurde vielfältig untersucht. So z.B. durch Feldexperimente in Indien von Bryson and Barreis [1967] oder in einer Studie zu Regentypen und Staub in Afrika von Maley [1982].

Eine neue Untersuchung von Min *et al.*, [2009] kombiniert Messungen von verschiedenen Plattformen, Fernerkundungsmessungen von Satelliten und Bodenmessungen. Das darin untersuchte konvektive System über dem Ostatlantik wurde zum Teil durch Saharastaub beeinflusst. Es zeigte sich, dass in dem Sektor mit Mineralstaub weniger große Hydrometeore und mehr Eispartikel detektiert wurden, was in diesem Fall zu einer Verringerung der Niederschlagsintensität geführt hat.

2.5.3 Quellgebiete

Abbildung 2.22 [Middleton and Goudi, 2001] zeigt die Quellstärken des Saharastaubs über dem Afrikanischen Kontinent, die anhand von Messungen mit dem Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) von 1999 abgeleitet wurden. Dargestellt ist die Quellstärke als Aerosol Index. Der Aerosolindex (AI) bezeichnet die Differenz zwischen dem gemessenen Spektralkontrast (340 nm bis 380 nm) und dem berechneten Kontrast, der sich für eine partikelfreie Gasatmosphäre ohne Mie-Streuung ergeben würde und dient zur Abschätzung der Staubmenge [Barkan *et al.*, 2004].

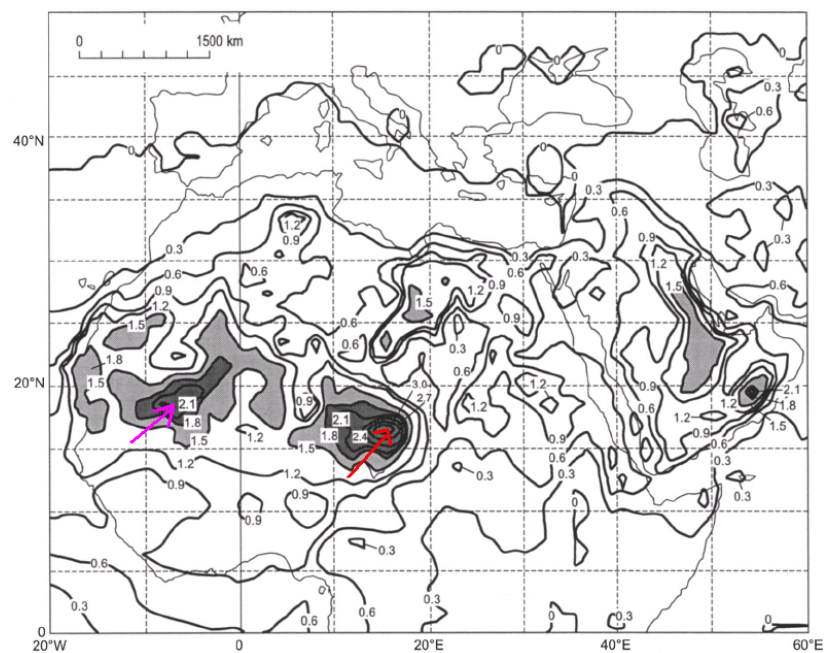


Abbildung 2.22: Quellgebiete von Saharastaub über Nordafrika (TOMS-Aerosol Index) basierend auf Daten des TOMS-Spektrometers aus dem Jahr 1999 [Middleton and Goudi, 2001]

Die Pfeile markieren Hauptquellregionen für Staub in Mali / Mauritania (violett) und der Bodélé-Senke (rot)

Der Saharastaub des stärksten Quellgebietes, der Bodélé – Senke (markiert mit rotem Pfeil in Abbildung 2.22) , wird in der Regel 2000 km südwestlich transportiert [Drees *et al.*, 1993] und gelangt schließlich in die innertropische Konvergenzzone, wo er durch den Niederschlag effektiv ausgewaschen wird [Afeti und Resch, 2000].

Der Jahresgang der Stärke der Quellregionen wurde von Barkan et al. [2004] in einer Klimatologie für die Jahre 1979-1992 ebenfalls anhand der Daten des TOMS-Instruments untersucht. Abbildung 2.23 zeigt einen markanten Jahresgang, mit den höchsten Werten des Aerosolindex im Juni.

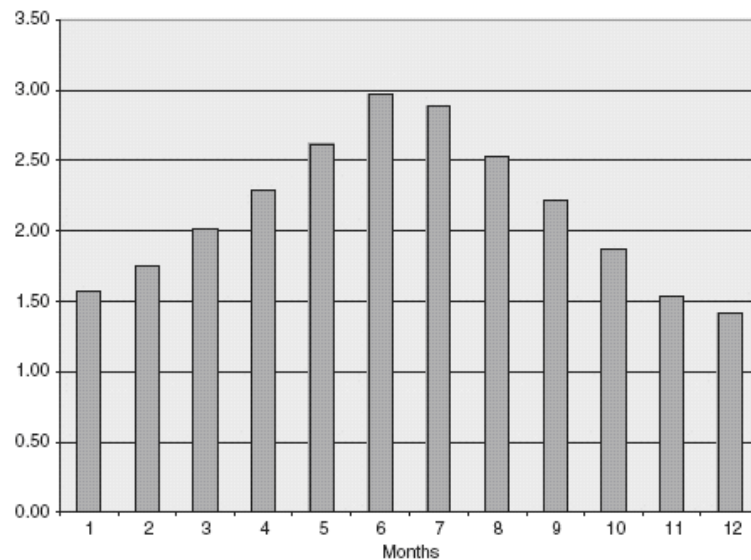


Abbildung 2.23: mittlerer monatlicher Aerosol Index (TOMS) aller Saharastaubquellgebiete (1979-1992) nach Barkan et al. [2004]

2.5.4 Ferntransport

Saharastaub weist nach mehr als 1000 km Ferntransport Partikelgrößen zwischen 1 bis 30 μm (Median) auf [Perry et al., 1997; Sala et al., 1996; Littman et al., 1991]. Die Klimatologie für den Ferntransport lässt verschiedene ausgezeichnete Transportwege erkennen.

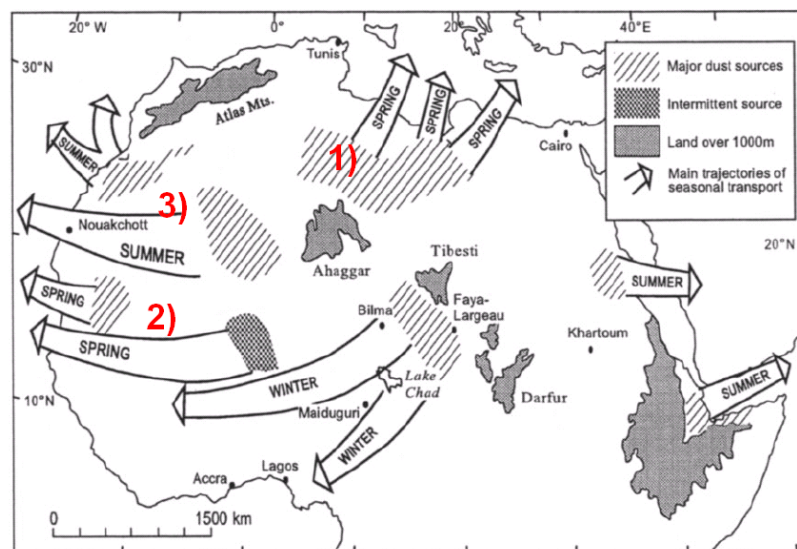


Abbildung 2.24: Quellen und Transportwege von Saharastaub nach Middleton [1986]
rote Zahlen markieren Transport über das Mittelmeer (1) und Transport auf den Atlantik (2) und (3)

(a) Direkter Transportweg nach Europa (Mittelmeer)

In Abbildung 2.24 [Middleton, 1986] sind Haupttransportwege des Saharastaubs eingezeichnet. Dabei führt ein Weg (1) über das Mittelmeer nach Südeuropa [Avila *et al.*, 1997] und kann teilweise bis nach Deutschland [Littman, 1991], Niederlande [Reiff *et al.*, 1986] und bis zu den Britischen Inseln [Wheeler *et al.*, 1985] und Skandinavien [Franzen *et al.*, 1994] reichen.

Anhand der TOMS Satelliten-Daten wurde in den Monaten März bis April 1999 mehr als 60% der Tage signifikante Staubmengen mit einem Aerosol-Index über 1,9 über dem Mittelmeer detektiert. Am geringsten waren die Werte für die Monate November und Dezember.

Als Quellregionen für die generellen Zugbahnen nach Europa über das Mittelmeer wurden Gebiete in Südalgerien sowie das südliche Marroko identifiziert [Molinaroli, 1996]. Die Druckkonstellation für einen solchen Transport nach Europa ist ein Trog über dem Ostatlantik. Die Ergebnisse in Kapitel 5 [Klein *et al.*, 2010] beziehen sich auf Eiskeimmessungen zu einem starken Staubereignis im Mai 2008, bei dem auf einen solchen Transportweg über das Mittelmeer Staub nach Mitteleuropa geführt wurde.

Mengenmäßig wird dieser Transport nach Europa mit $80\text{--}120 \times 10^6$ Tonnen basierend auf den Jahren 1981/1982 abgeschätzt [D'Almeida, 1986]. Von der angegebenen Menge wird jedoch ein beträchtlicher Anteil im Mittelmeer sedimentiert (jährliche Sedimentraten betragen 10 g/m^2 für das westliche Mittelmeergebiet, 20 g/m^2 für das östliche Mittelmeergebiet und $0,4\text{--}1 \text{ g/m}^2$ für den Transport über die Alpen. [Guerzoni, 1997])

(b) Transport von Saharastaub auf den Atlantik

Die Masse an Saharastaub, die über die Transportwege (2,3) auf den Atlantik hinaus transportiert wird, wird dagegen in einer Studie [Kaufmann *et al.*, 2005] mit 240×10^6 Tonnen abgeschätzt, das entspricht 30% - 50% der Gesamtquelle [Schütz *et al.*, 1981; D'Almeida, 1986].

Ein wichtiges Quellgebiete für den Transport auf den Atlantik liegt in Mauritien-Mali (mit Pfeil in Abb. 2.22 gekennzeichnet). Der Transport auf den Atlantik geschieht in Abhängigkeit von der Höhe durch kontinentale Passatwinde, die so genannte „Saharan Air Layer“ oder die African Easterly Jets [Schütz, 1980, D'Almeida, 1987]. Dagegen sind für den Staubtransport aus der westlichen Sahara (Südmorroko) die maritimen Passatwinde maßgeblich, die aus Nordosten wehen. [Schütz, 1980, Grousset *et al.*, 1992].

Middleton und Goudie [2001] ermittelten den stärksten Transport auf den Atlantik in den Monaten April bis Juni 1999 für den Breitenbereich $10^\circ\text{N}\text{--}20^\circ\text{N}$ und Juli-September 1999 für den Breitenbereich $20^\circ\text{N}\text{--}35^\circ\text{N}$.

Die Jahresgänge der Mineralstaubkonzentration für zwei Stationen (Abbildung 2.25) auf den Inseln Barbados und Bermuda, zeigen die Auswirkungen des Ferntransports von Saharastaub über den Atlantik mit maximalen Werten im Sommer (vgl. Abbildung 2.23). Durch die südlichere Lage, ist Barbados stärker von dem Ferntransport betroffen was sich in deutlich höheren Konzentrationen widerspiegelt.

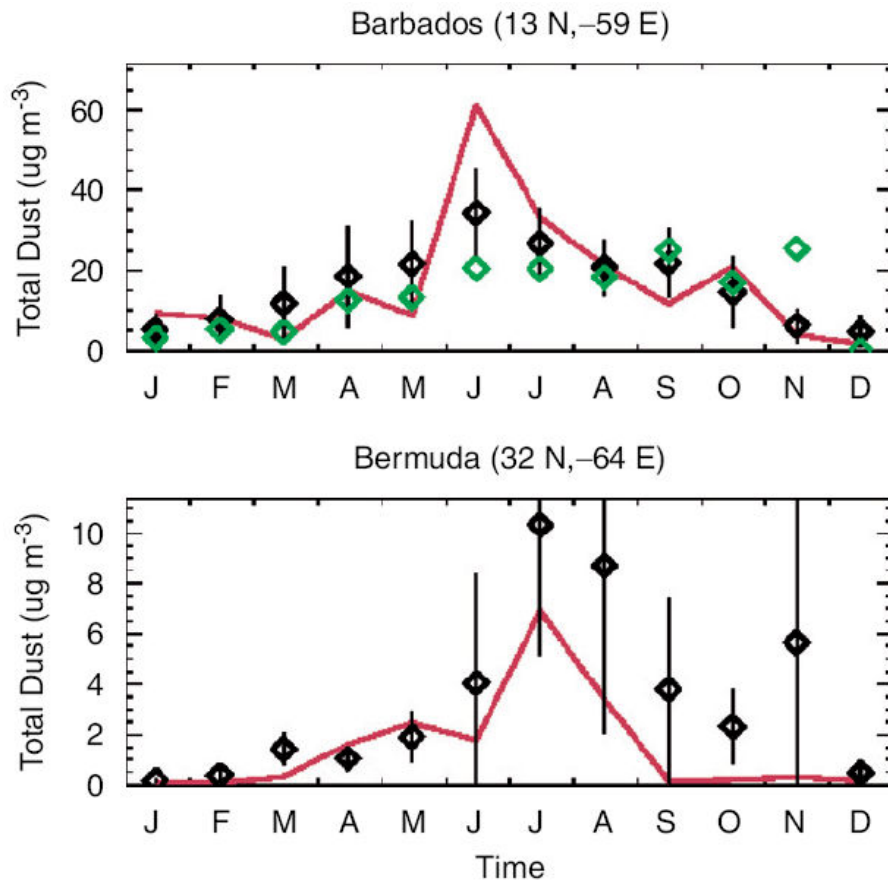


Abbildung 2.25: gemessene Monatsmittel (schwarze Rauten) und Standardabweichungen der Staub-Konzentration für Barbados und Bermuda Daten von der U. Miami Klimatologie. Die Rote Linien zeigen simulierte Werte (GEOS-Chem) für 2001. Messungen von 2001 sind mit grünen Rauten gekennzeichnet..(Quelle: [Duncan Fairlie et al., 2007])

Abbildung 2.26 zeigt die globale Verteilung der Quellen und Ausbreitung von Mineralstaub für die verschiedenen Jahreszeiten, abgeleitet von dem Aerosol Index, der anhand von Messungen des Satelliteninstrumentes TOMS bestimmt wurde. Zusätzlich ist das Ergebnis des durchschnittlichen Modelloutput für die optische Dicke durch Staubaerosol AOD_{Dust} für die jeweiligen Jahreszeiten angegeben [Tegen, 2009].

Optische Dicke und Staubmenge nehmen über Europa nach Norden hin ab.

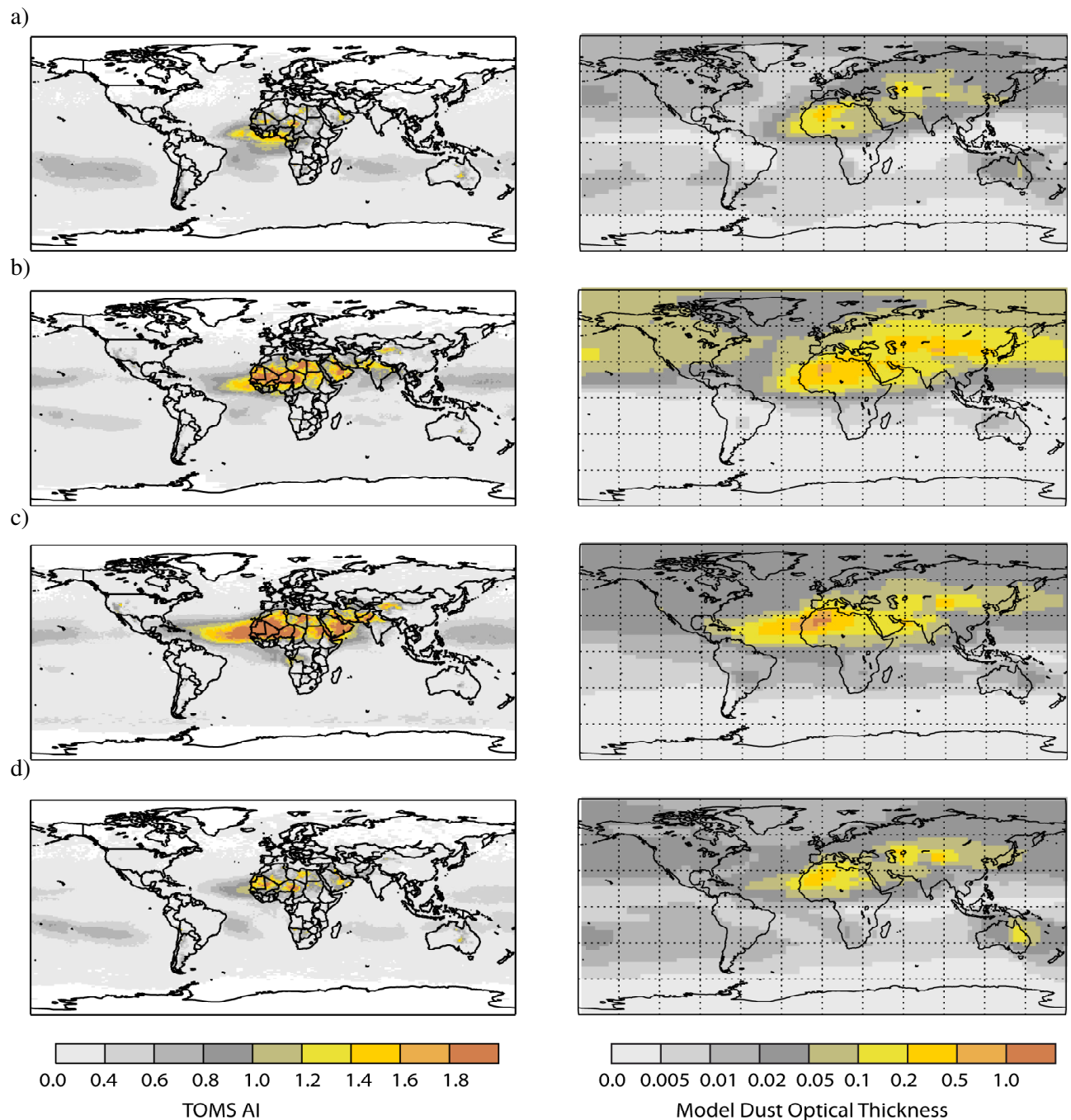


Abbildung 2.26: globale Mineralstaubverteilung
(links) TOMS – Aerosol Index
(rechts) Model Dust Optical Thickness
(a) Winter (b) Frühling (c) Sommer (d) Herbst (Quelle: [Tegen, 2009])

(c) Indirekter Transport nach Europa

Die Hauptroute, mit der Saharastaub in westlichen Richtungen hinaus auf den Atlantik transportiert wird, hat jedoch auch einen Einfluss auf das Vorkommen von Saharastaub in Europa.

Betrachtet man dazu das Schema der globalen Zirkulation in Abbildung 2.27 [NASA, 2008], erkennt man einen Transportweg innerhalb der Ferrel-Zelle, auf dem Luftmassen aus dem Nordost-Passat vor der Westküste Nordafrikas nordwärts in die Westwindzone eingemischt werden (roter Pfeil). Anteile des Mineralstaubes, der von der Sahara aus auf den Atlantik transportiert wird, können auf diesem indirekten Wege nach Europa gelangen.

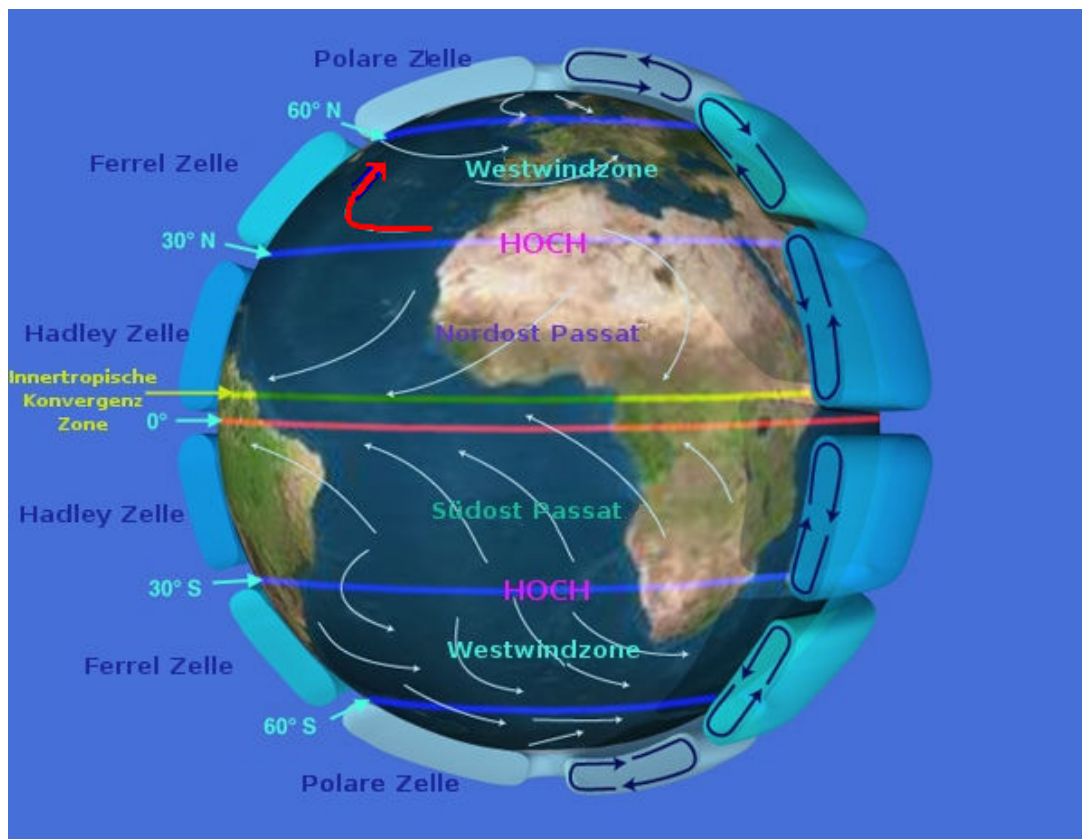
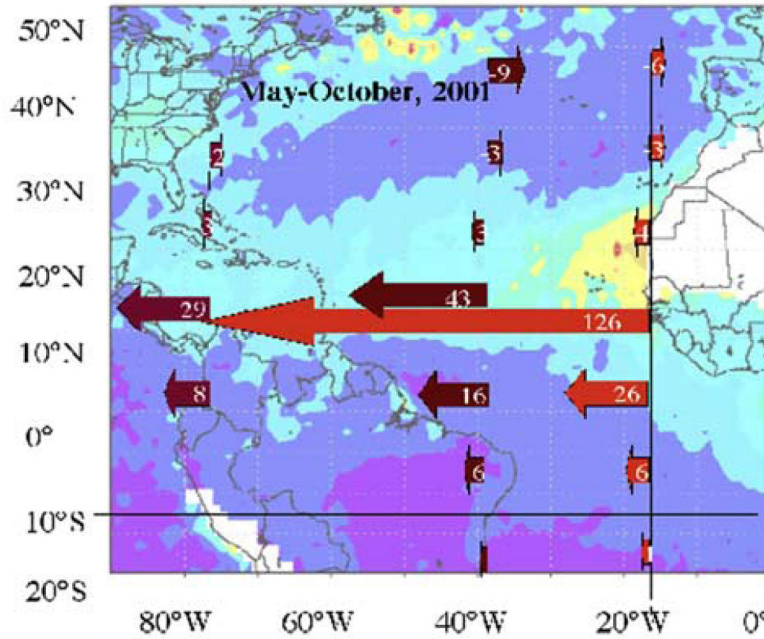


Abbildung 2.27: Schema der globalen Zirkulation (nach [NASA, 2008]) Rot markiert ist der Transportweg innerhalb der nördlichen Ferrelzelle durch den Saharastaub vom Atlantik aus in die Westwindzone eingemischt werden kann.



2.5.6 Transport von Saharastaub, Wasserdampftransport

Huang et al. [2010] weisen einen deutlichen Jahresgang des Staubtransports bezüglich der geographischen Breite nach. In Folge einer Zusammenschau mit dem Jahresgang des zonal gemittelten Wasserdampfs und einem systematischen Vergleich kommen sie zu dem Ergebnis, dass beide Jahresgänge (mit gewissen Abweichungen) zusammenfallen. In Abbildung 2.29 [*Huang et al.*, 2010] ist dieser Zusammenhang dargestellt.

Dabei treten in den mittleren Breiten bei 50° maximale Werte und höchste Standardabweichungen für den Saharastaubtransport in den Monaten Mai und Juni auf (rot markiert in Abbildung 2.29). Folgt man diesem Ergebnis ist zu den Monaten Mai und Juni ein saisonales Maximum des Saharastaubtransports in der Westwindzone zu erwarten.

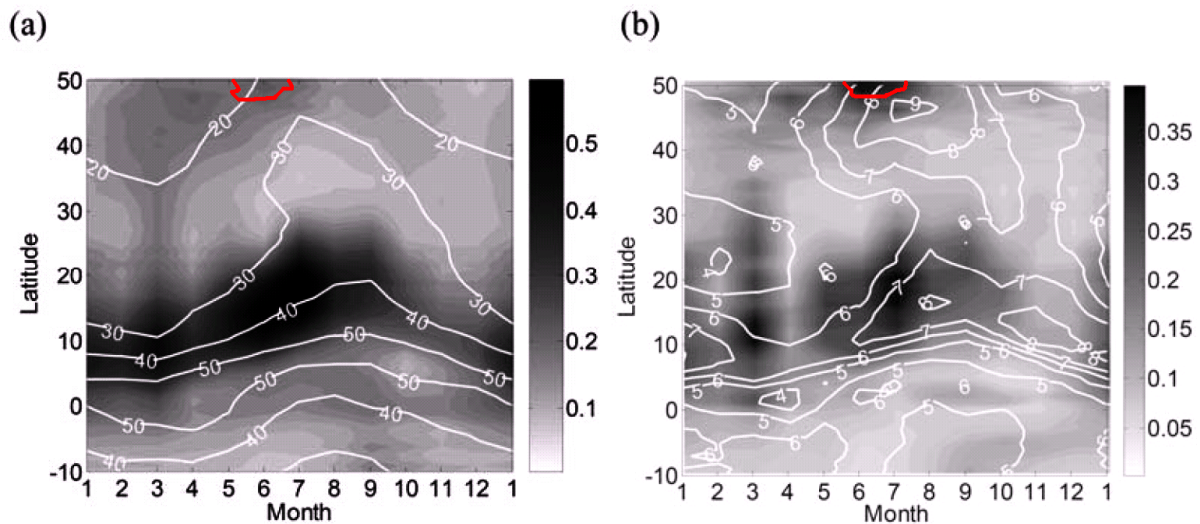


Abbildung 2.29: mittlerer Jahresgang

(a) des Monatsmittel der Aerosol Optische Dichte für Mineralstaub (AOD_{Dust}) in Graustufen und Wasserdampf in Konturen ($kg\ m^{-2}$)

(b) des Monatsmittel der täglichen Standardabweichung von AOD_{Dust} in Graustufen und Wasserdampf in Konturen ($kg\ m^{-2}$).

Alle Werte wurden über den Längenbereich von $15^\circ W$ - $50^\circ W$ gemittelt (*Huang et al.*, 2010). Die zusätzlich eingetragene rote Kontur markiert das Maximum von AOD_{Dust} im Mai-Juni bei $50^\circ N$.

In den Monaten Mai und Juni ist ebenfalls die Eiskeimkonzentration am Kleinen Feldberg maximal, damit bestätigt das Ergebnis von *Huang et al.* [2010] von einer weiteren Perspektive, die bereits dargestellte Argumentation. Nicht allein bezogen auf den Punkt, dass ein maßgeblicher Ferntransport von Saharastaub über den indirekten Transportweg stattfindet, sondern auch insbesondere darin, dass die beobachtete Saisonalität in den Eiskeimkonzentrationen Zentraleuropas möglicherweise von dem Transport von Saharastaub auf dem indirekten Weg über den Nordatlantik geprägt ist.

Die wichtigsten Ergebnisse der Eiskeimmessungen in Bezug auf Mineralstaub werden in folgender Auflistung zusammengefasst:

| |
|---|
| 1. Peaks in der Eiskeim-Zeitreihe fallen sehr häufig mit direktem Transport aus der Sahara zusammen. |
| 2. Der Jahresgang der Monatsmittelwerte der Eiskeimkonzentration folgt dem Jahresgang von AOD _{Dust} (MISR-Datenbasis und gemittelt aus AERONET-Messungen) |
| 3. Die Eiskeimkonzentrationen einzelner Proben sind deutlich mit den AERONET-MAINZ AOD _{Dust} Messwerten korreliert. |
| 4. Die Eiskeim-Konzentration ist am besten korreliert mit der Anzahlkonzentration der Aerosolpartikel zwischen 2-3.6 μm ., ein Bereich in dem Mineralstaub-Aerosol zu erwarten ist. |
| 5. In Kapitel 5 [<i>Klein et al. , 2010</i>] wird gezeigt, dass die Aktivierungsspektren während eines Staub-Ereignisses sich nicht signifikant von denen des gesamten Jahres unterscheiden und somit könnte es sein, dass Mineralstaub die IN-Konzentration während des gesamten Jahres dominiert. |

2.6 Jahresgang der Transportwege

Die monatlichen Eiskeimkonzentrationen des Jahresganges ($T_{\text{akt}} = -18^\circ\text{C}$ und 119 % RH_{Eis}) sind in Abbildung 2.30 in Komponenten bezüglich ihres Transportwegs aufgeschlüsselt worden.

Dazu wurden die gemessenen Konzentrationen anhand der entsprechenden Rückwärtstrajektorien des Norwegischen Luftforschungsinstituts „Norsk institutt for luftforskning“ (NILU) für den Kleinen Feldberg (in 500, 1000, 1500 m) klassifiziert.

Für den Fall das die Rückwärtstrajektorien innerhalb der sieben Tage auf den afrikanischen Kontinent und sein direktes Umfeld zurückführten ($\text{lat} < 36^\circ \text{N}$; $-18^\circ < \text{lon} < 50^\circ \text{O}$) wurde der Transportweg als „direkt“, beziehungsweise „mediterran“ gekennzeichnet. Endeten die Rückwärtstrajektorien im Nordatlantik (geographische Länge $< 0^\circ \text{O}$) wurde dagegen der Transportweg als „indirekt“, bzw. „Atlantik“ gekennzeichnet. Alle übrigen Fälle (kontinentale Trajektorien, nördliche oder östliche Anströmung) wurden in die Kategorie „Rest“ aufgenommen.

Das erste Diagramm von Abbildung 2.30 (oben) zeigt, wie sich die Monatsmittelwerte zusammensetzen. Dabei handelt es sich um die mit der Konzentration gewichtete Häufigkeit. Die darunter liegenden Diagramme zeigen dagegen die Monatsmittelwerte der IN-Konzentration für die einzelnen Transportwege.

Das Diagramm zeigt, dass der Jahresgang der Eiskeimkonzentration im Allgemeinen durch den Anteil des Transports aus der Westwindzone („Atlantik“) charakterisiert wird, wobei im Mai ein entscheidender Anteil der IN-Konzentration auf den direkten Transportweges („Mediterran“) zurückzuführen ist. Die Komponente der übrigen Strömungsrichtungen („Rest“) besitzt in den Monaten April-September einen zusätzlichen Anteil.

Betrachtet man den Verlauf der Eiskeimkonzentration singulär für den Atlantik-Sektor, zeigt sich ein gleichmäßigeres Ansteigen und Absinken im Vergleich zur Gesamtkonzentrationsreihe der Monatsmittelwerte. Das Maximum des Jahresgangs liegt hier dann um einen Monat verschoben im Juni.

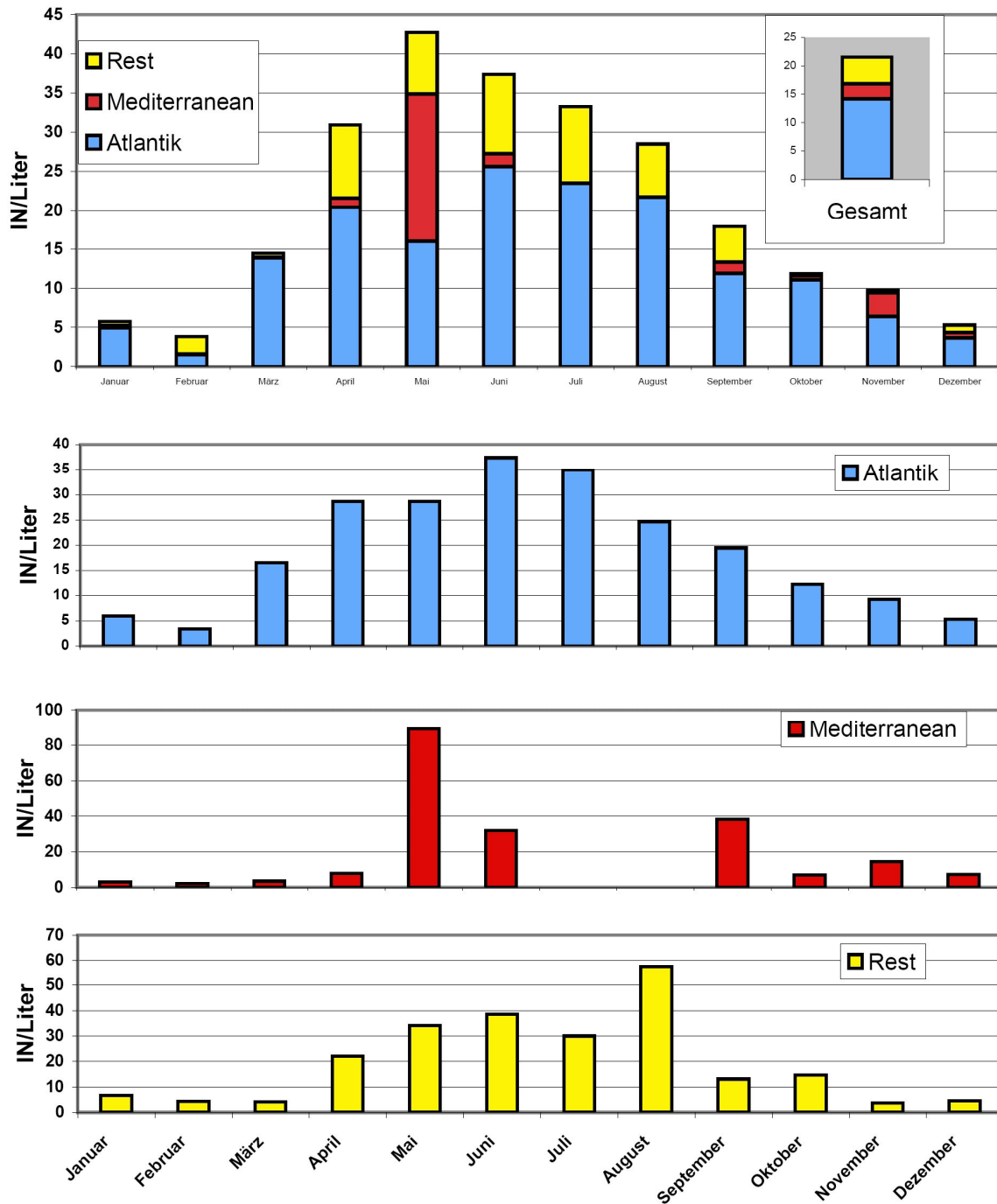


Abbildung: 2.30

(oberes Diagramm) mittlerer Jahresgang der Eiskeimkonzentration (2008-2009) aufgeschlüsselt nach Luftmassen-Ursprungsgebieten (anhand 7 Tage Rückwärtstrajektorien von (NILU))

blau-Transport vom Atlantik (geog. Länge < 0°O)

rot – Transport vom Afrikanischen Sektor (mediterraner Transportweg)
(geog Breite < 36°N, -18°O < geogr. Länge < 50°O)

gelb- übrige Ursprungsgebiete

(untere Diagramme) mittlerer Jahresgang der Eiskeimkonzentration für die einzelnen Transportwege.

2.7 weitere Aerosolkomponenten

Neben Mineralstaub werden in der Literatur in Bezug auf die Wirksamkeit zur primären Eisbildung in der Atmosphäre die Relevanz andere Aerosolkomponenten diskutiert, darauf wird in diesem Kapitel gesondert eingegangen.

2.7.1 Komponentenanalyse

Im Rahmen einer Kooperation im Projekt A2 des SFB 641 wurde gemeinsam mit der Arbeitsgruppe für Umweltmineralogie der TU-Darmstadt eine Methode entwickelt, um die Zusammensetzung von Eiskeimen zu untersuchen. Dabei wird nach der Analyse eines Probenträgers mit FRIDGE die Probe in das Environmental-Scanning-Electron-Microscope (ESEM) eingelegt. An den entsprechenden Stellen, die Eispartikelbildung (oder Aktivierung der IN) gezeigt haben, wird das als Eiskeim charakterisierte Aerosolpartikel auf dem Probenträger mittels EDX-Elementanalyse auf seine molekulare Zusammensetzung untersucht. Die nachträglichen Elementanalysen von Eiskeimen auf den Probeträgern der vorliegenden Studie mit dem ESEM sind jedoch sehr aufwändig. Daher sind sie zum Zeitpunkt dieser Arbeit nur für einige einzelne Proben verfügbar.

Abbildung 2.31 zeigt Ergebnisse der Probe 527 vom 25.5.2009 (14:35 Uhr UTC), die mit einer Eiskeimkonzentration von 38,6 IN/Liter ($T=-18^{\circ}\text{C}$ $\text{RH}_{\text{Eis}}=119\%$) leicht über dem Monatsmittelwert von 33.3 IN/Liter liegt. Neben einem überwiegenden mineralischen Anteil (Silikate, Calcium-Eisen (*Ca/Fe-Reich*)) wurde bei dieser Probe auch ein markanter Anteil an biologischem Aerosol detektiert.

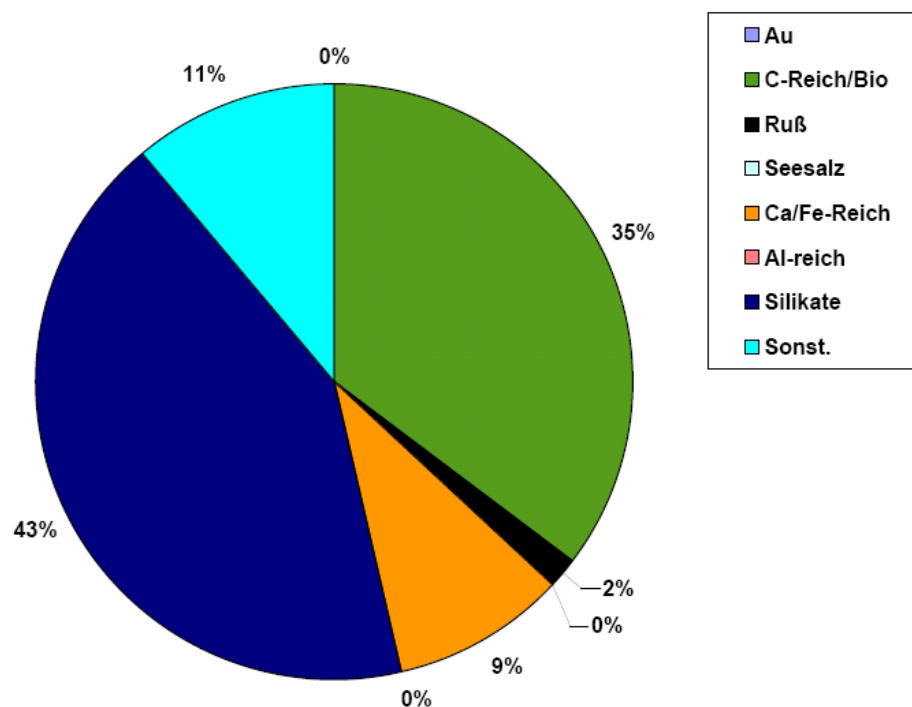


Abbildung 2.31: Ergebnis der EDX-Elementanalyse einzelner Eiskeime einer FRIDGE Aerosol-Probe vom 22.05.2009 / 14:35 UTC (Probe Nr. 527) (Thomas Herrmann, TU-Darmstadt, Umweltmineralogie). Dargestellt ist der prozentuale Anteil verschiedener Partikelklassen an der Gesamtanzahl der analysierten Partikel ($n=54$). Die Analyse wurden am Environmental Scanning Electron Microscope (ESEM) durchgeführt (Zimmermann et al. [2007]).

In diesem Zusammenhang ist die Verwendung von Silizium-Wafer Probenträgern für ESEM – Analysen auch mit Nachteilen verbunden, da der Silikatanteil eines Partikels aufgrund des Hintergrundsignals durch den Probenträger nicht auf einfachen Wege ermittelt werden kann. Jedoch überwiegt auch in diesem Fall der Vorteil, durch die störungsfrei glatte Oberfläche.

Untersuchungen von Eispartikel-Residuen im Rahmen der Messkampagne CLACE-6 auf der Forschungsstation Jungfraujoch in den Schweizer Alpen (46,5 °N 8 °O , 3580 m Höhe) zeigen neben einen starken Anteil von mineralischen Partikeln (31%), einen Anteil von mineralischen Aerosol gemischt mit Sulfat (47%), Kalium (Potassium) (2%), und metallischen Komponenten (14%) und einen kleineren Anteil von Ruß (Black Carbon 2%) [Kamphus et al., 2009] - siehe Abbildung 2.32. Der Anteil primären biologischen Aerosols (PBAP, *Primary Biological Aerosol Particle* – primäre Biologische Aerosol Partikel) wird dabei mit 2-3% abgeschätzt-

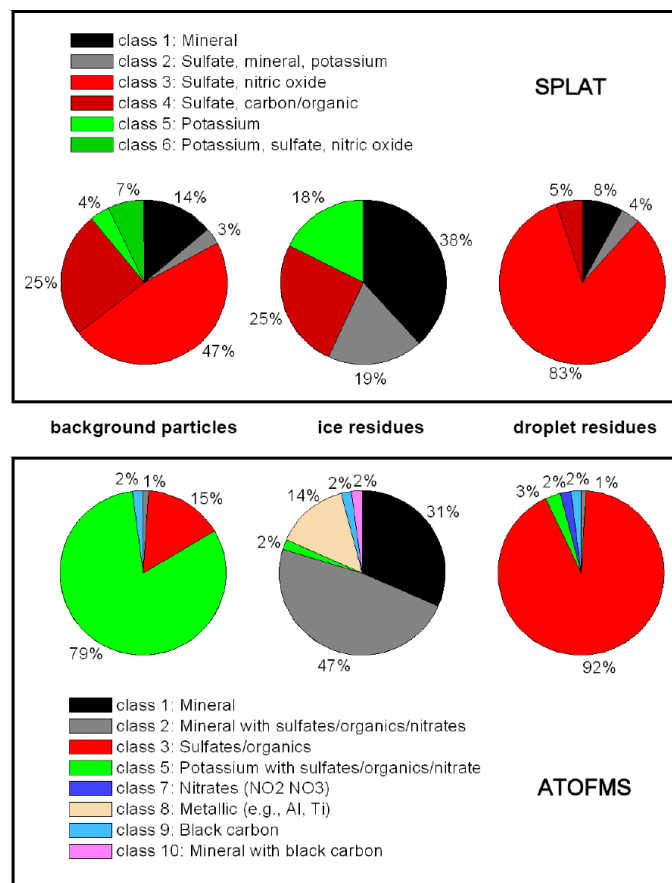


Abbildung: 2.32

Häufigkeit des Auftretens einzelner Partikelklassen in

(links) Hintergrundaerosol

(mitte) Eispartikel-Residuen

(rechts) Tropfen-Residuen

Messungen auf dem Jungfraujoch (Schweiz 46,5 °N 8 °O , 3580m a.s.l.) (Messperiode 17.2.2007-18.3.2007) jeweils für das Single Particle Laser Ablation Time-of-Flight Mass Spectrometer (SPLAT) und Aerosol Time Of Flight Mass Spectrometer (ATOFS) Instrument. (Kamphus et al. (2009))

Pratt et al. [2009] haben bei einer Messung über Wyoming eine Zusammensetzung mit einem hohen Anteil von biologischen Partikeln, Seesalz, Ruß, oder organischem Kohlenstoff neben dem Mineralstaub gefunden.(siehe Abbildung 2.33)

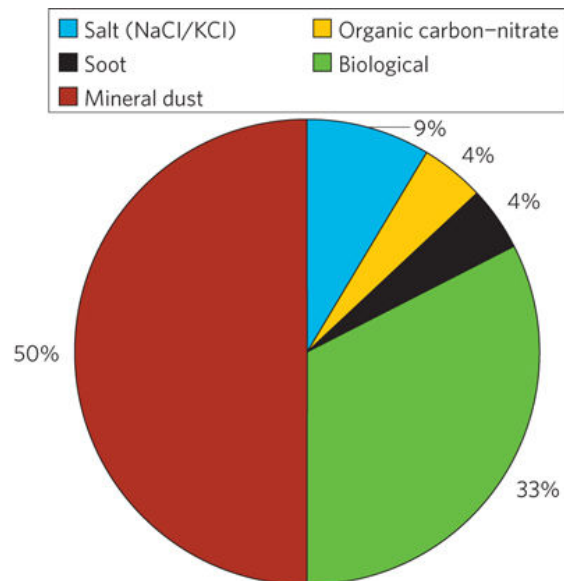


Abbildung: 2.33

Relative Anteile verschiedener Partikeltypen (gemessen am 7.11.2007 ~21:00 in Wyoming vom Ambient Aerosol Time Of Flight Mass Spectrometer) für 46 Eis-Residualpartikel (140-700nm) $60 \pm 13\%$ des Mineralstaubs war mit Boden- /biologischem Material intern gemischt. (Quelle: [Pratt et al., 2009])

Die Analysen von Eiskeimresiduen verschiedener Studien liefern im Detail oft deutliche Unterschiede (so finden z.B. Twohy [2005] auch im Bereich der heterogenen Nukleation noch hohe Salzanteile). Meist wird jedoch einen dominanten Anteil von mineralischen Komponenten detektiert ([Kamphus, 2009]; [Targino, 2006]; [Heintzenberg et al., 1996] ; Twohy and Gandrud [1998] and Chen et al. [1998])

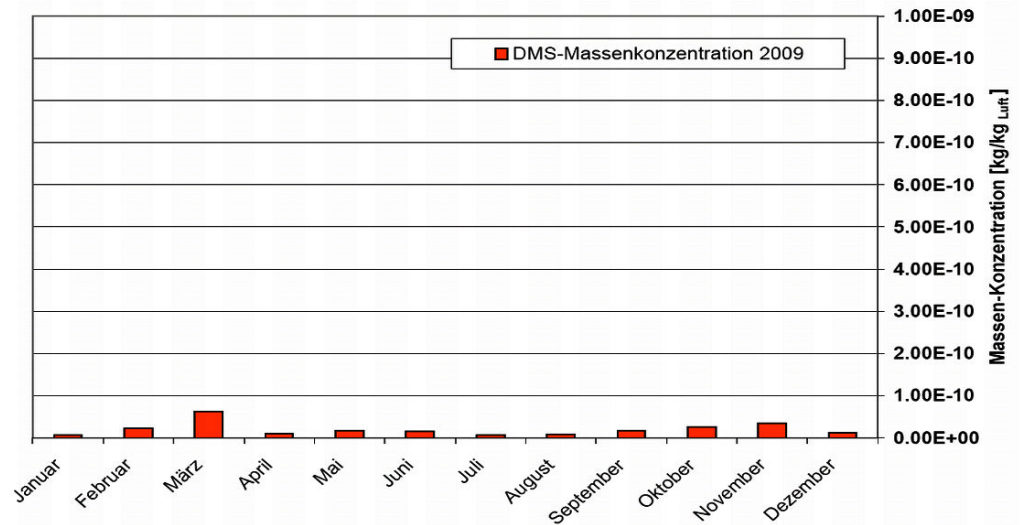
In Bezug auf die Eiskeimzeitreihe ist es sinnvoll, auch die saisonalen Schwankungen der weiteren Aerosolkomponenten für die Region Kleiner Feldberg zu betrachten, wie sie teilweise aus Modellrechnungen vorliegen. In Abbildung 2.34 sind die mittleren Jahresgänge der Massenkonzentrationen für die Aerosol-Komponenten Dimethylsulfid (DMS), Sulfat, Organischer Kohlenstoff, Elementarer Kohlenstoff (Ruß) und Seesalz für das Jahr 2009 als Monatsmittelwerte dargestellt (Modellrechnungen des GoCart Modells). Die Daten beziehen sich auf den nächsten Gitterpunkt des Modells zum Kleinen Feldberg. .

Die Jahresgänge zeichnen sich durch geringe Korrelationen mit den Eiskeimkonzentrationen aus und können alleine nicht den beobachteten Jahresgang der IN-Konzentration erklären.

Der Einfluss, den diese Aerosolkomponenten auf die Eiskeimkonzentration in den Messungen verschiedener Proben jeweils besitzen, lässt sich allerdings anhand der Jahresgänge nicht im Einzelnen klären. Daher sind Einzelpartikelanalysen für die weitere Beurteilung notwendig.

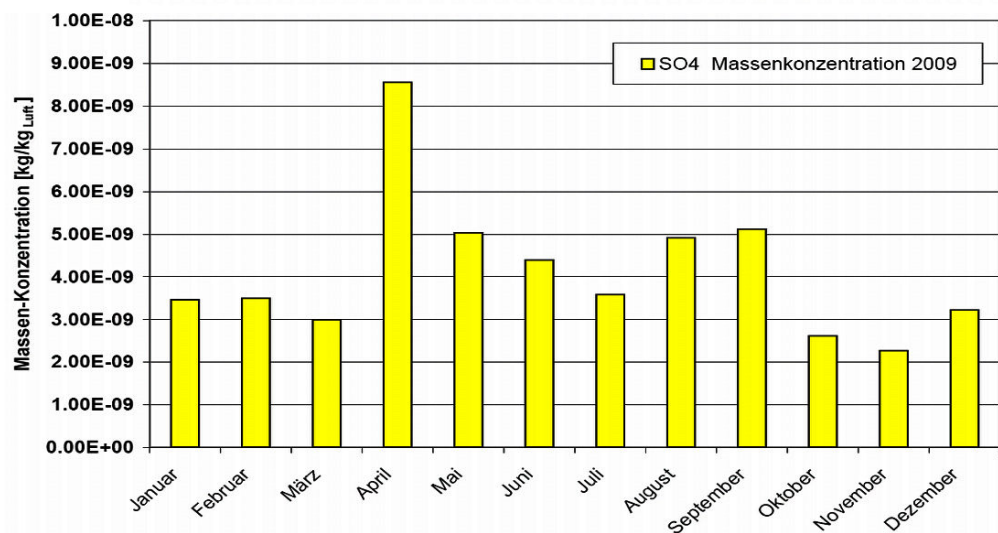
Dimethylsulfid

(Y-Skala:
1E-09)



Sulfat SO₄

(Y-Skala:
1E-08)



Organischer Kohlenstoff

(Y-Skala:
1E-08)

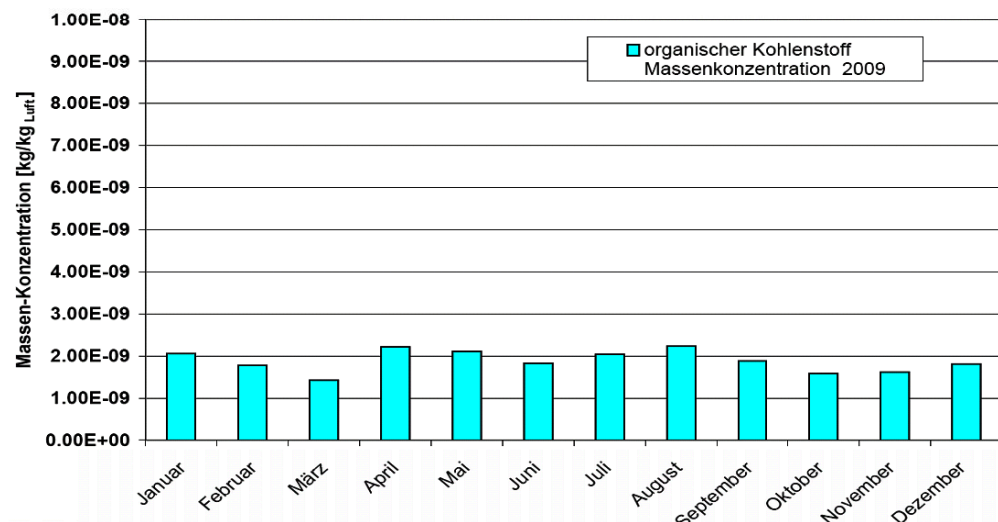
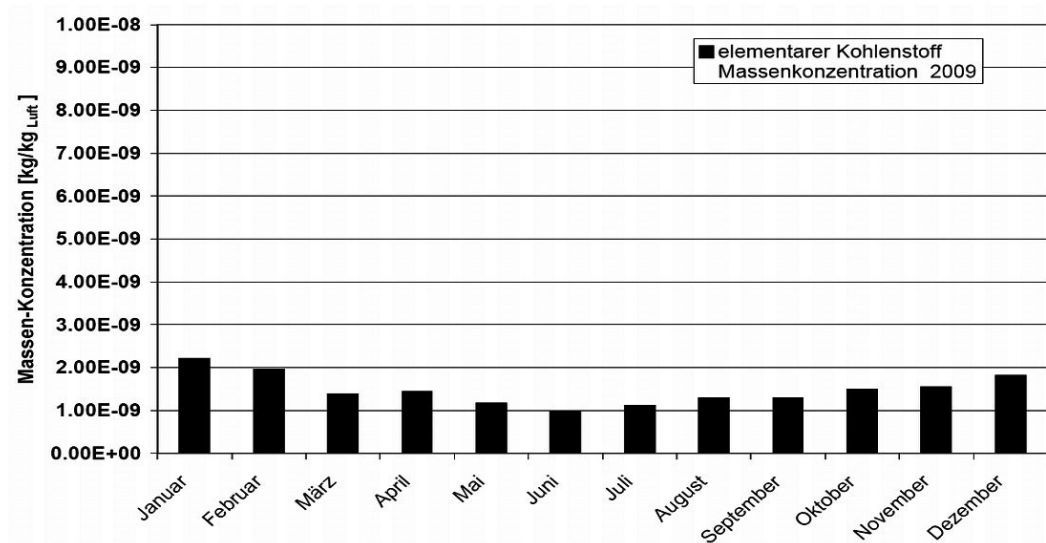


Abbildung: 2.34 a

Modellierte Jahresgänge Massenmischungsverhältnisse ($\text{kg}/\text{kg}_{\text{Luft}}$) verschiedener Aerosolkomponenten für den Modellpunkt ($50.22^\circ\text{N} / 8.76^\circ\text{O}$) von dem globalen GoCart-Modell (2009) (orange: DMS, gelb: SO_4 , blau: OC) (Das Jahresmittel der Massenkonzentration für Mineralstaub liegt bei $7,5 \cdot 10^{-9} \text{ kg}/(\text{kg Luft})$) (DATENQUELLE: GrADS-Datenserver NASA)

Elementarer Kohlenstoff

(Y-Skala:
1E-08)



Seesalz

(Y-Skala:
1E-08)

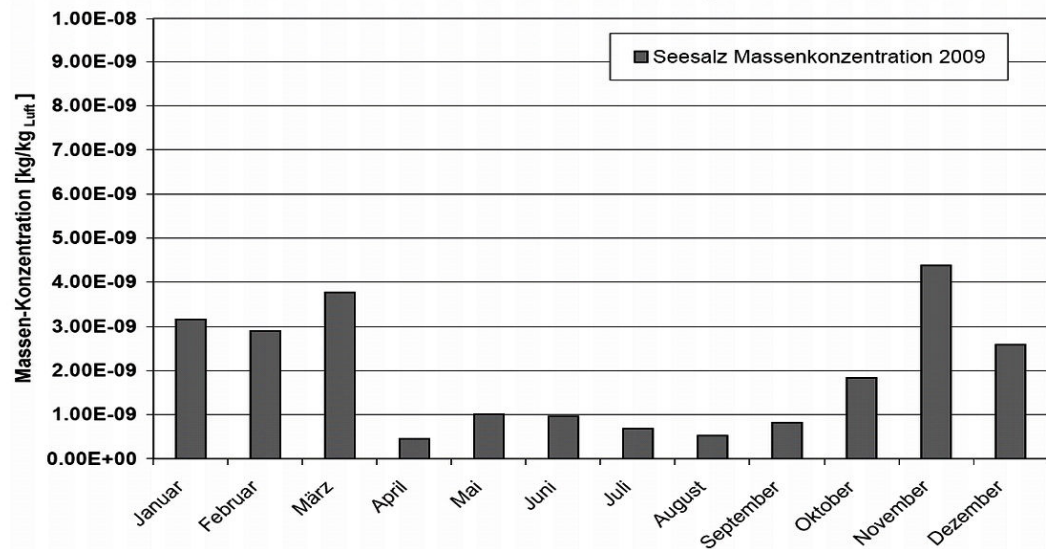


Abbildung: 2.34 b (fortgesetzt)

Modellierte Jahresgänge Massenmischungsverhältnisse ($\text{kg/kg}_{\text{Luft}}$) verschiedener Aerosolkomponenten für den Modellpunkt ($50.22^\circ\text{N} / 8.76^\circ\text{O}$) von dem globalen GoCart-Modell (2009) (schwarz: BC, grau: Seesalz) (Das Jahresmittel der Massenkonzentration für Mineralstaub liegt bei $7,5 \cdot 10^{-9} \text{ kg/(kg Luft)}$) (DATENQUELLE: GrADS-Datenserver NASA)

2.7.2 Primäre Biologische Aerosol Partikel

Wie bedeutend der Einfluss primärer biologischer Partikel (PBAP) auf die Eiskeimkonzentration ist, ist bislang noch nicht geklärt. In einer aktuellen Modellstudie von Hoose *et al.* [2010] wird der Einfluss von Biopartikeln auf globaler Skala als sehr untergeordnet und marginal eingeschätzt. Nach den Modellergebnissen tragen PBAP nur zu $10^{-5} \%$ zur primären Eisbildung bei in Vergleich zu Komponenten wie Mineralstaub (88 %) und Ruß (12 %).

Innerhalb des CAM-Oslo Modells wird der Einfluss der Biopartikel auf die Eiskeimfähigkeit (beim Immersions/Kondensations-Gefrieren) grob unterteilt in 88 % Pollen, 11 % Bakterien und 1 % Pilzsporen. Abbildung 2.35. zeigt die zonal über alle Höhen gemittelten Ergebnisse [Hoose et al., 2010]

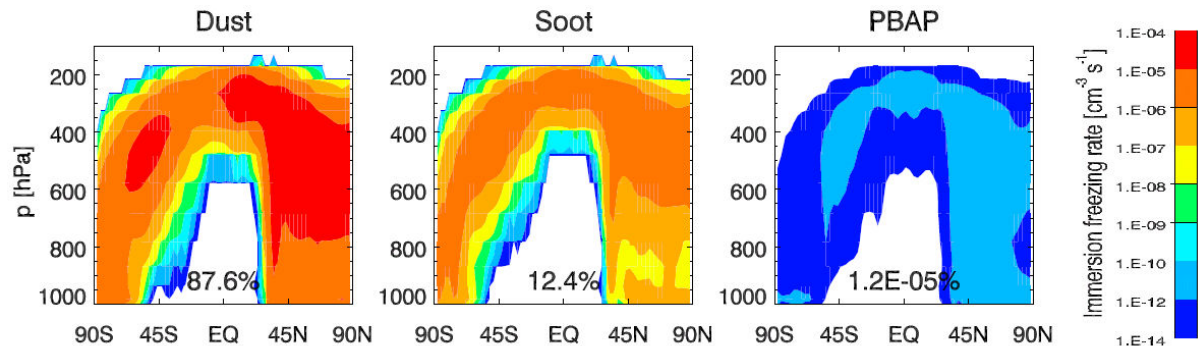


Abbildung: 2.35 Jährliche zonal gemittelte Gefrierenraten (Immersion-Gefrieren, beinhaltet Kondensationsgefrieren) des CAM Oslo Modells für Mineralstaub („Dust“), Ruß („Soot“) und Bioaerosol („PBAP“). Zusätzlich angegeben ist der jeweilige prozentuale Anteil zur Gesamtgefrierenrate (Immersionsgefrieren). (Quelle:[Hoose et al., 2010])

Eine sehr grobe Abschätzung des Jahresganges der Pollen-Emission anhand der monatlichen Blattflächen-Indizes („Leaf-Area-Index“, Daten von dem Satelliten Terra / MODIS) und der vereinfachten Parametrisierung basierend auf Jacobson und Streets [2009] (ohne Berücksichtigung der Feuchtigkeit) liefert einen Jahresgang der durchaus Ähnlichkeiten zum in dieser Arbeit gefundenen Jahresgang der Eiskeimkonzentration aufweist (Abbildung 2.36). Pollen haben jedoch als die größten Bioaerosole Durchmesser von 10-100 μm (mit der Ausnahme von Birkenpollen 30-100 μm) . Sie befinden sich damit in einem Größenbereich, der von dem Einlasssystem am kleinen Feldberg (Cut-Off bei 23 μm) kaum erfasst wird.

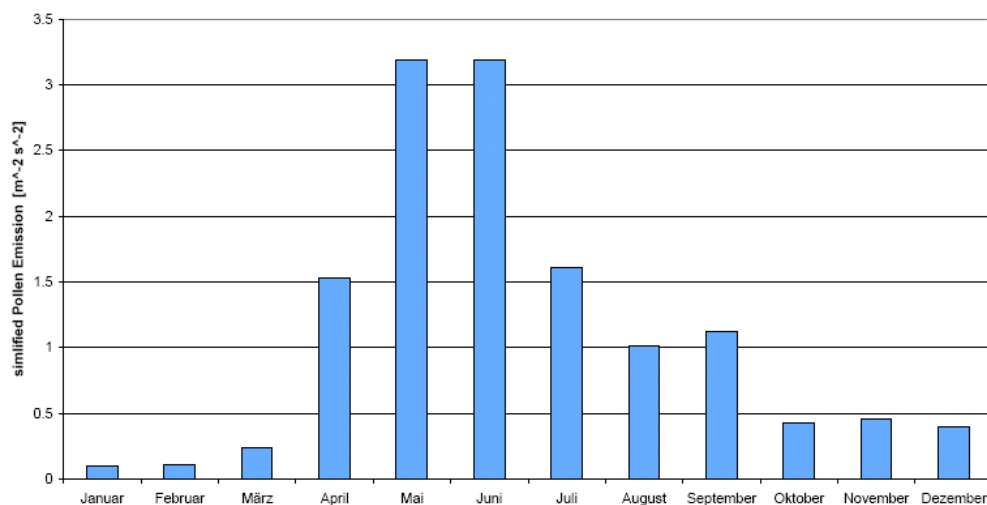


Abbildung: 2.36 Abschätzung des Jahresganges der Pollen-Emission für Mittel-Deutschland Berechnung (vereinfacht (gemäß Hoose et al., [2010]) nach Jacobson and Streets [2009] unter Verwendung der monatlichen MODIS-Daten (NASA) für den Blattflächenindex (Leaf Area Index).

Bakterien kommen in der Atmosphäre dagegen in einem Größenbereich von $0,5\ \mu\text{m}$ bis $50\ \mu\text{m}$ vor und haben ihre höchste Konzentration ebenfalls im Sommer ([Amato et al., 2006], [Tong und Lighthart, 2000], [Burch und Levetin, 2002]). Die meisten Bakterienkulturen, für die eine bedeutende Eiskeimeffizienz nachgewiesen wurden sind *GRAM*-negativ (Wirksamkeit auf eine Indikationsfärbung) und wachsen bei vergleichsweise niedrigen Temperaturen [$T = 5^\circ\text{C}$] [Amato et al., 2006]. Zu den wirksamsten Eiskeim - Bakterien gehören die *Pseudomonas syringae*. Die Eiskeimwirksamkeit ist bei den bakteriellen Aerosol an das Protein mit der Bezeichnung Ina-Z gekoppelt. ([Schnell und Vali, 1972], [Maki et al., 1974], [Yankofsky et al., 1981]). Morris et al. [2004] kommen in ihrer Studie zu dem Ergebnis, dass die Bakterienspezies *Erwinia herbicola*, *Erwinia ananas*, *Pseudomonas fluorescens* und *Pseudomonas syringae* bei Temperaturen ab einer Obergrenze von $T = -2^\circ\text{C}$ als Eiskeime wirksam sein können.

Burrows et al. [2009] modellierten einen saisonalen Verlauf der atmosphärischen Verweilzeit der Bakterien (Nordhemisphäre), der sich durch ein Maximum im Mai und Minima im Januar/Februar auszeichnet (siehe Abbildung 2.37). Betrachtet man die hier abgeschätzte Saisonalität für biologische Partikel, wie Bakterien und Pollen, ist unter diesem Aspekt nicht auszuschließen, dass der signifikante Jahresgang in der Eiskeimkonzentration neben Mineralstaub auch durch eine biologische Komponente geprägt wird. Zu dem Zeitpunkt der vorliegenden Arbeit lagen nicht genügend der IN - Komponentenanalysen vor (siehe Kapitel 2.7.1), um diesen Punkt abschließend zu klären.

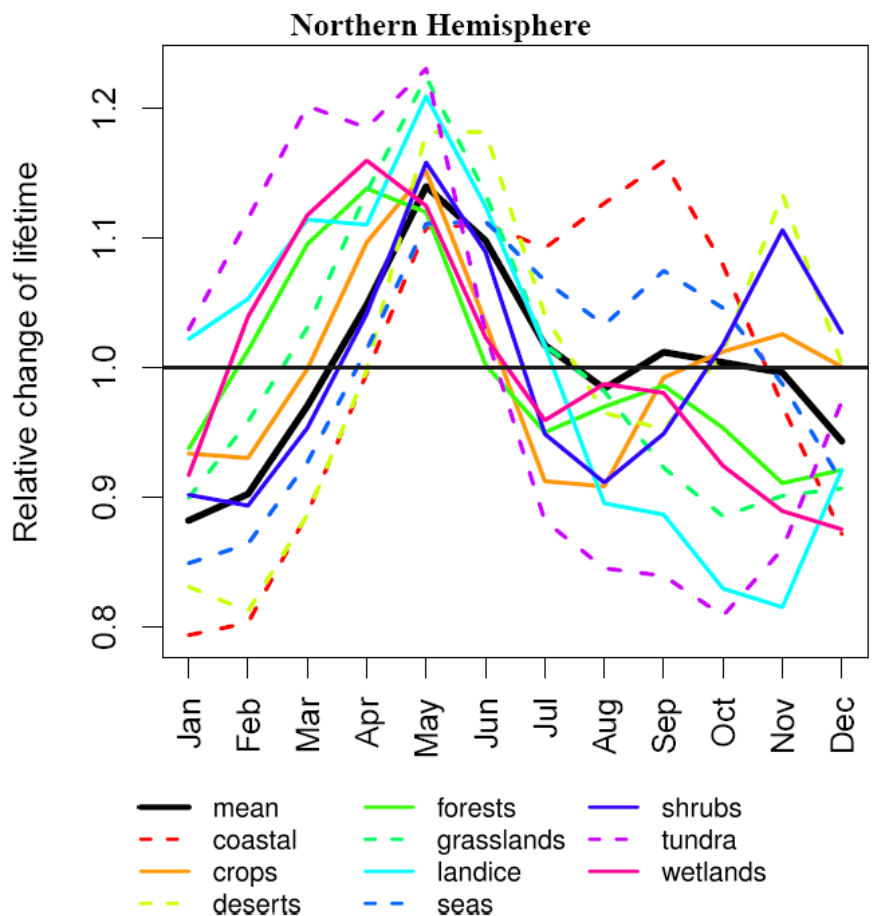


Abbildung: 2.37 Jahresgang der relativen Lebenszeit (bezogen auf die mittlere hemisphärischen Lebenszeit) für Bakterien-Tracer ($1\ \mu\text{m}$, homogen emittiert, CCN-active) (Quelle: [Burrows et al., 2009])

2.8 Aktivierungsspektrum im Jahresmittel

Anhand der Messungen bei neun verschiedenen Aktivierungsbedingungen kann die mittlere Eiskeimkonzentration in Abhängigkeit von Temperatur und Feuchte für den Jahresgang am kleinen Feldberg dargestellt werden. Dabei ergibt sich in Abbildung 2.38 eine Zunahme der Eiskeimkonzentration sowohl mit zunehmender Feuchte (RH_{Wasser}) als auch mit abnehmender Temperatur.

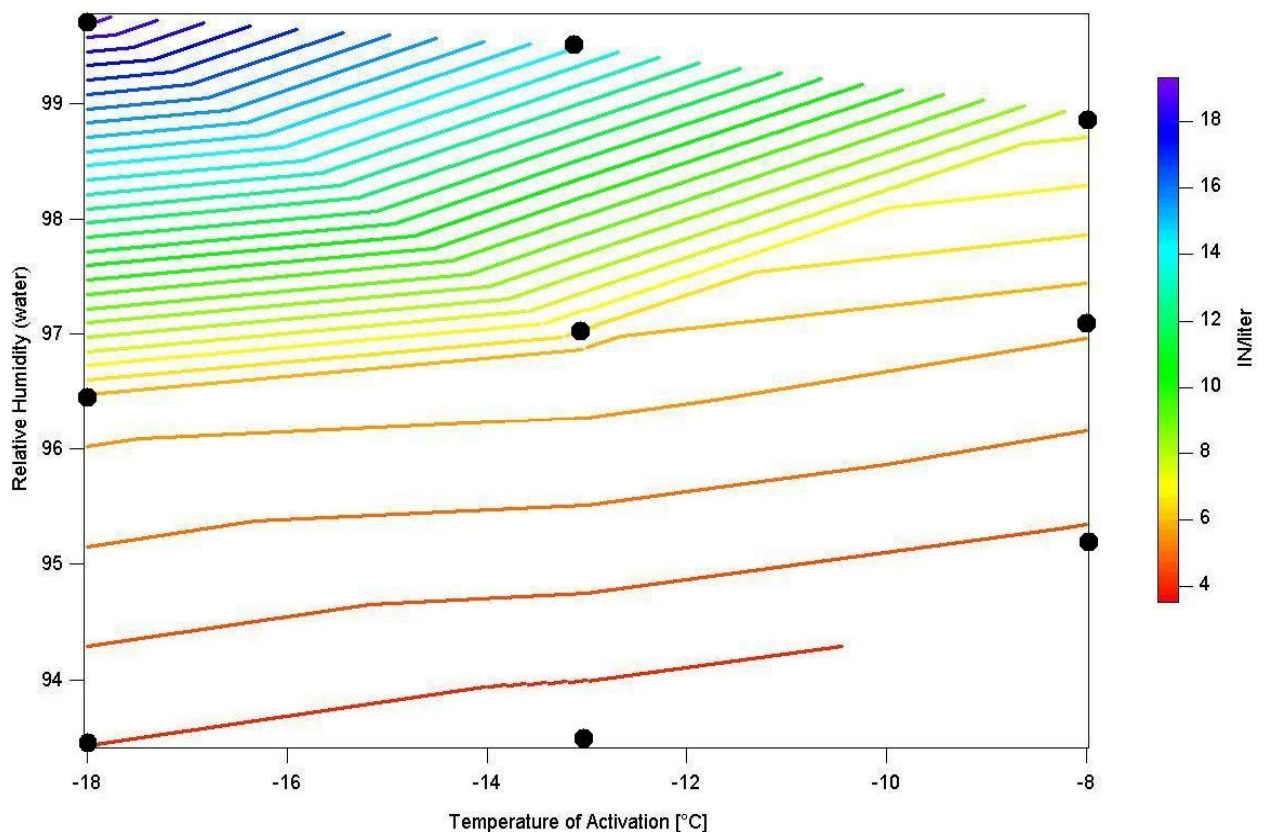


Abbildung 2.38: mittleres Eiskeim-Aktivierungsspektrum für einen Jahresgang (2008/2009)
 IN-Konzentration in Abhängigkeit von Temperatur (Temperature of Activation) und Feuchte RH_{Wasser} (Relative Humidity). Die 9 Messbedingungen sind durch schwarze Kreise gekennzeichnet und entsprechen den Angaben in Tabelle 2.1

Die Messungen mit der Vakuumdiffusionskammer ergeben innerhalb des Messbereichs, dass die Eiskeimkonzentration bei einer Reduktion der Aktivierungstemperatur um 1°C weniger stark ansteigt, als bei einer Erhöhung der relativen Feuchte um 1%.

Vergleicht man die Ergebnisse mit der Eiskeimparametrisierung von *Fletcher* [1962] (Abbildung 2.39) zeigen sich enorme Abweichungen um mehrere Größenordnungen. Die Eiskeimparametrisierung von *Fletcher* [1962] bezieht sich dabei auf die Aktivierungstemperatur des Aerosols. und ist unabhängig von einer spezifischen Übersättigung. Im Vergleich mit der neueren Parametrisierung von *Meyers et al.* [1992] liegen die Messwerte in derselben Größenordnung (Abbildung 2.39). Die Parametrisierung von Meyers basiert auf Messungen mit der kontinuierlichen Messmethode der CFDC-Eiskeimzähler („Continuous Flow Diffusion Chamber“). Als Ergebnis einer funktionalen Näherung an den empirischen Datensatz, wurde von *Meyers et al.* [1992] folgende Exponentialgleichung aufgestellt, die die Eiskeimkonzentration der jeweiligen Übersättigung (in Bezug auf Eis) gegenüberstellt.

$$N_{id} = \exp \{ a + b [100 (S_i - 1)] \} \quad (2.2)$$

dabei ist N_{id} [IN/Liter] die Eiskeim-Anzahlkonzentration, S_i die Feuchte in Bezug auf Eis und $a = -0,639$, $b = 0,1296$ sind Konstanten.

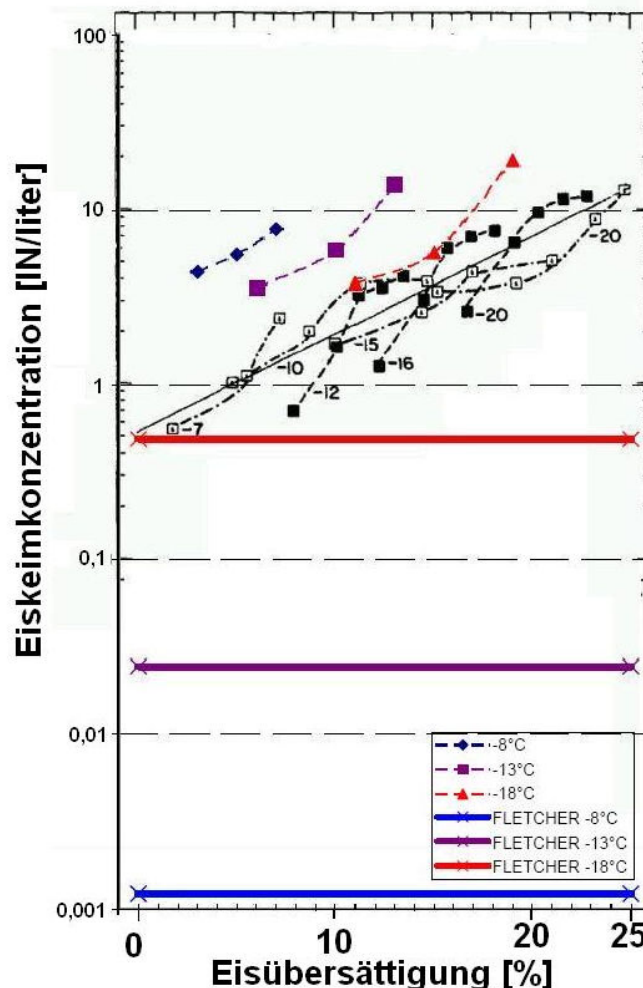


Abbildung 2.39: Eiskeimkonzentration in Abhängigkeit der Eisübersättigung (basierend auf Abbildung von Meyers et al.[1992]) (schwarze Symbole entsprechen CFDC-Messergebnissen : offene Quadrate Rogers [1982], gefüllte Quadrate Al-Naimi und Saunders [1985] schwarze Linie: Regressionsgerade (New primary Ice-Nucleation Parameterization $N_{id} = \exp(N+B s_{v,i}) s_{v,i}$; Übersättigung über Eis [%]; N,B :Parameter) Farbige Symbole: FRIDGE Jahresmittelwerte – Kleiner Feldberg: blau -8°C, violett: -13°C, rot -18°C Farbige durchgezogene Linien: Eiskeimkonzentrationen gemäß Parametrisierung von Fletcher [1962])

2.9 räumliche Repräsentativität in Mitteleuropa

In den vorangegangenen Kapitel 2.3./2.4. wurden deutliche Hinweise dafür aufgeführt, dass Mineralstaubferntransport die Eiskeimkonzentrationen an der Messstelle Kleiner Feldberg maßgeblich beeinflussen und zu einem signifikanten Jahresgang in der Eiskeimkonzentration führen kann. Im Anschluss an diese Untersuchung, soll nun überprüft werden, inwieweit die Lage des Messstandorts in Bezug auf den Mineralstaub repräsentativ für den Großraum Mitteleuropa sind. Dazu wurden langjährige Datenaufzeichnungen von zehn europäischen Stationen des Sonnenphotometer-Netzwerk AERONET benutzt. Die Lage der Stationen ist in Abbildung 2.40 dargestellt. Station (1) (Mainz) liegt nahe bei der Messstation am Kleinen Feldberg (~30 km südwestlich).



Abbildung 2.40 Positionen repräsentativer Stationen des Sonnenphotometernetzwerks AERONET (1-10) für den Bereich Zentral-Europa (gelb), sowie drei weiter außen liegende europäische Stationen (A,B,C)

Für die zehn ausgewählten Stationen wurden die Jahresgänge der Monatsmittelwerte der Aerosol-Optischen-Dicke (Extinktion) von groben Mineralstaub berechnet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 2.41 dargestellt.

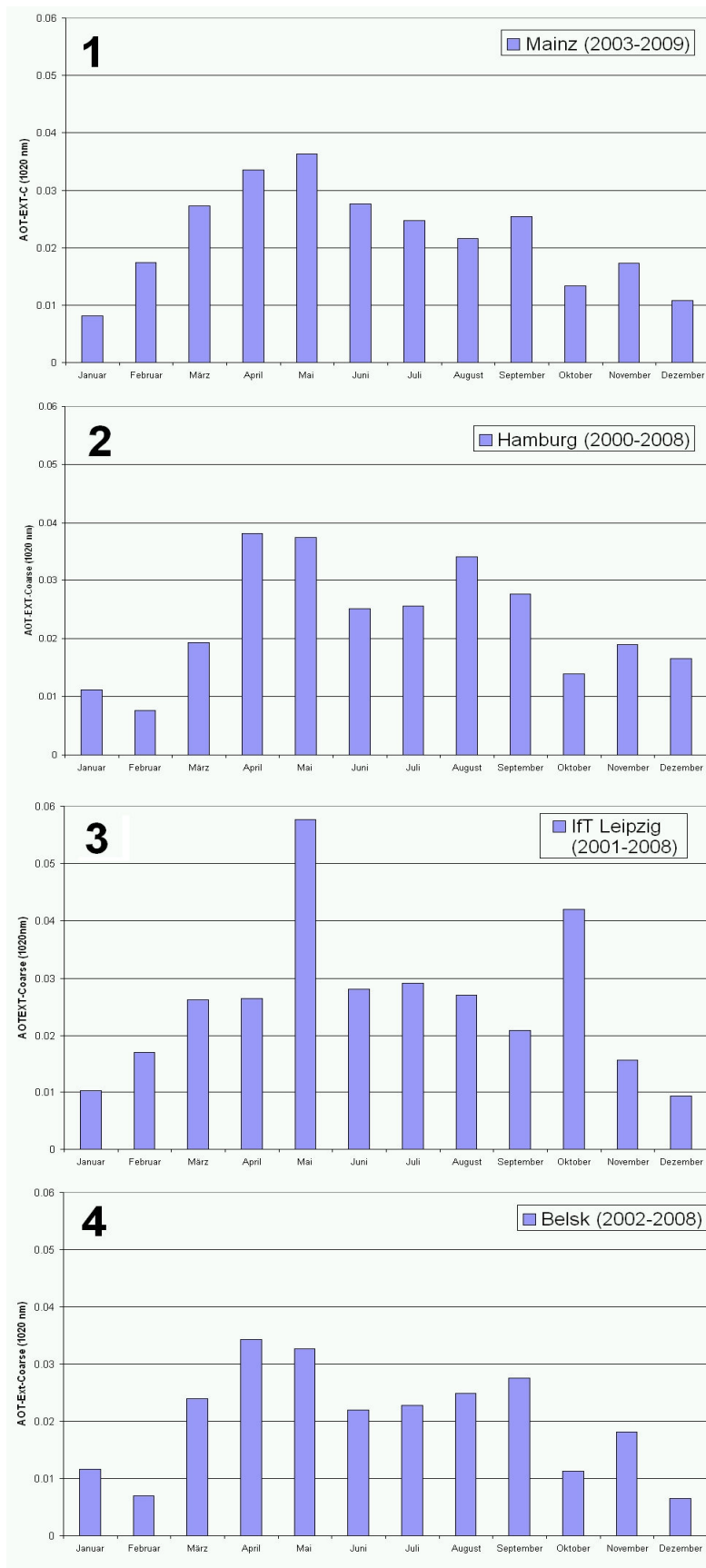


Abbildung 2.41: durchschnittlicher Jahresgang von AOD-Dust (Extinktion) der zehn AERONET-Stationen (siehe Abbildung 2.40) berechnet durch Mittelung aller verfügbaren Einzelmessungen über einen mehrjährigen Zeitraum. (DATENBASIS AERONET)

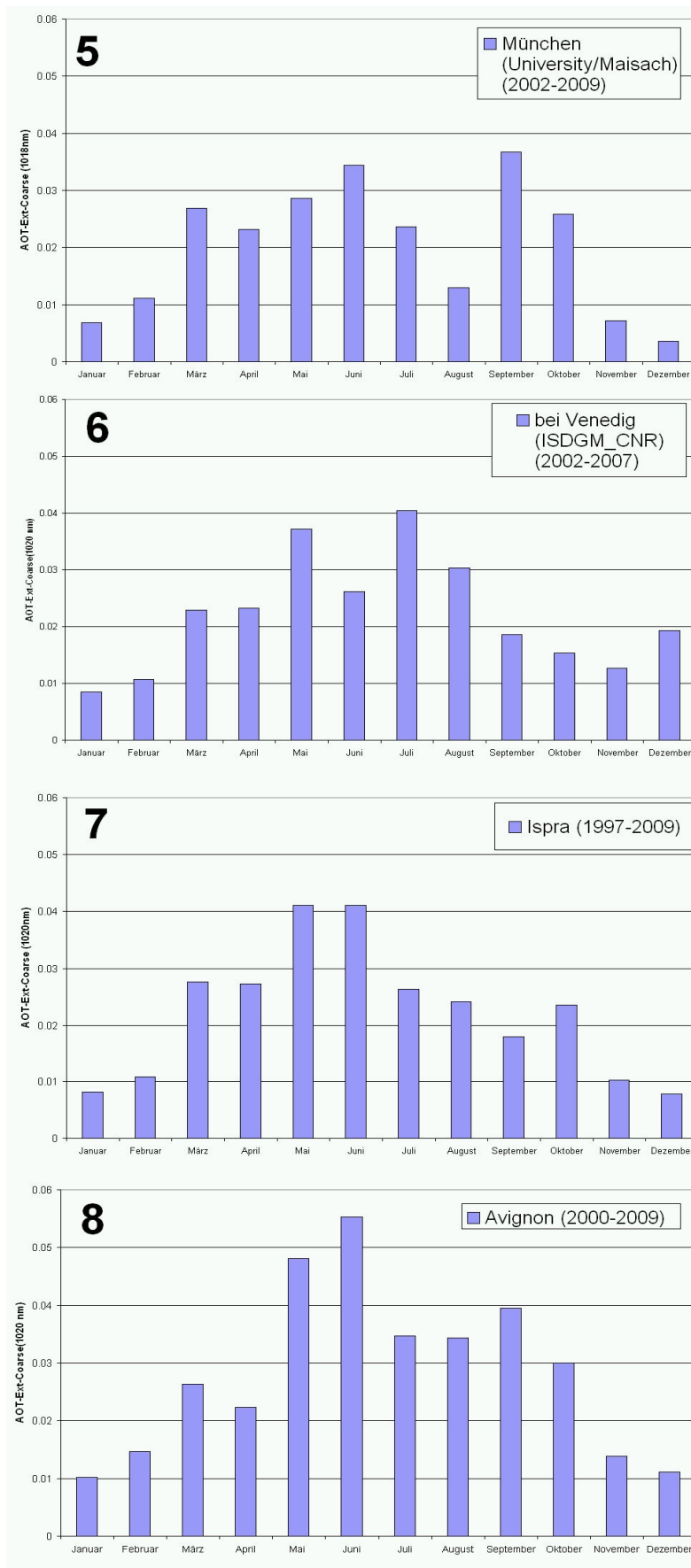


Abbildung 2.41 (fortgesetzt): durchschnittlicher Jahresgang von AOD-Dust (extinktion) der zehn AERONET-Stationen (siehe Abbildung 2.40) berechnet durch Mittelung aller verfügbaren Einzelmessungen über einen mehrjährigen Zeitraum.(DATENBASIS AERONET)

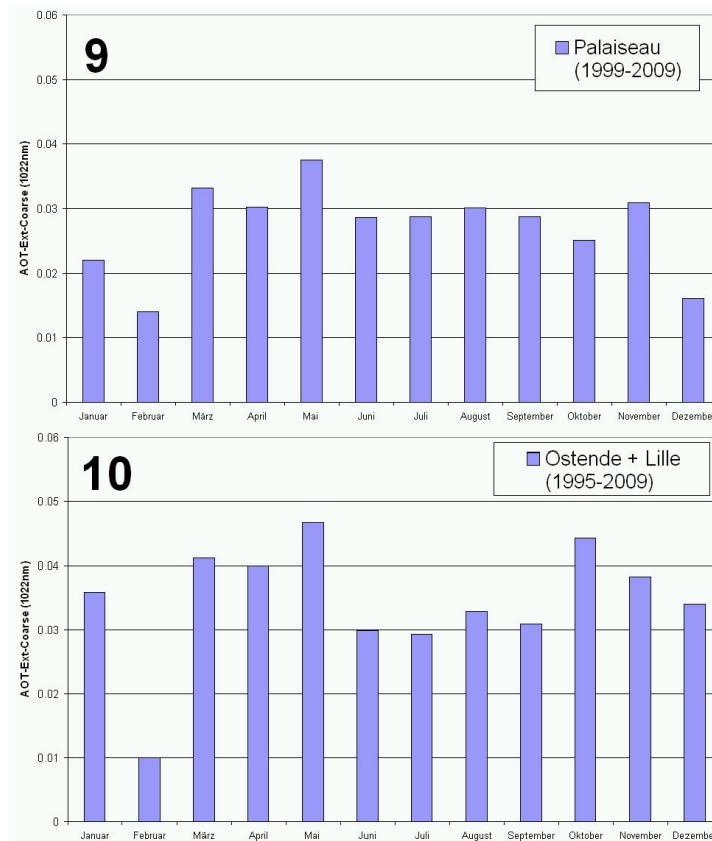


Abbildung 2.41 (fortgesetzt): durchschnittlicher Jahresgang von AOD-Dust (extinktion) der zehn AERONET-Stationen (siehe Abbildung 2.40) berechnet durch Mittelung aller verfügbaren Einzelmessungen über einen mehrjährigen Zeitraum.(DATENBASIS AERONET)

Die Stationen (1) bis (8) zeichnen sich deutlich durch maximale Werte im Sommer und minimale Werte im Winter aus. Die Stationen (9) und (10), die im nordwestlichen Teil liegen haben ebenfalls ein Minimum im Winter (Februar) und ein Maximum im Mai, die Mittelwerte sind jedoch ansonsten über mehrere Monate eher auf einem gleich bleibenden Niveau.

Abbildung 2.42 zeigt einen zentraleuropäischen Jahresgang von AOD_{Dust} . Dieser wurde anhand der Messwerte an den zehn ausgewählten Stationen erstellt. Dabei wurde vorausgesetzt, dass langfristige zeitliche Trends gegenüber dem Jahresgang untergeordnet sind.

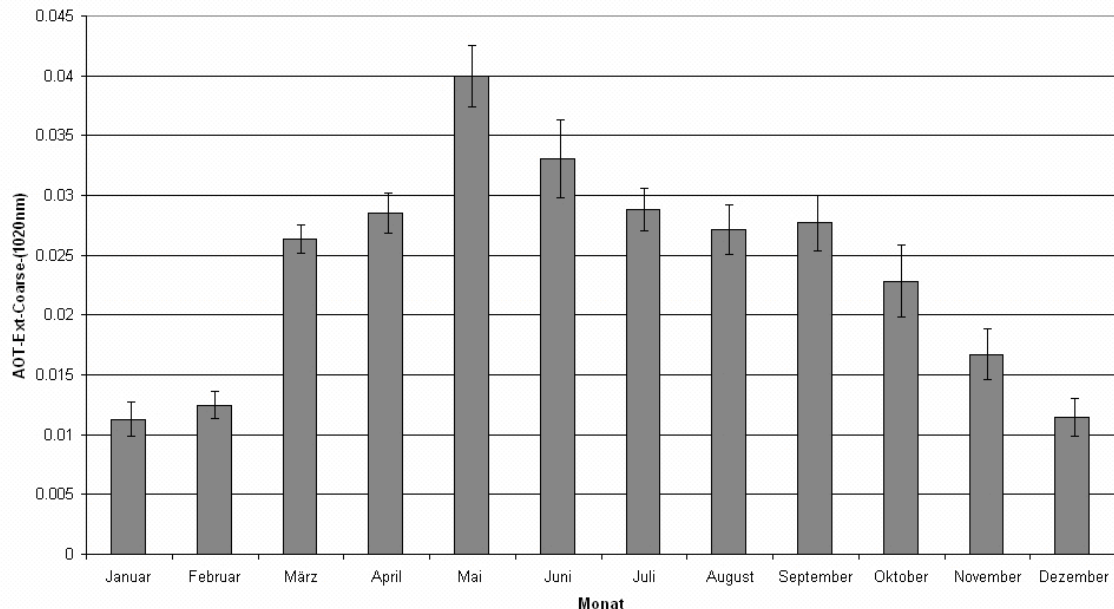


Abbildung 2.42 mittlerer Jahresgang von AOD_{Dust} für Zentraleuropa (1995-2009) anhand AERONET-Daten (Mittelung der 10 Jahresgänge aus Abbildung 2.41). Die Fehlerbalken entsprechen der Variation, berechnet gemäß des Standardfehlers des Mittelwerts (σ/\sqrt{n})..

Ein Vergleich des mittleren Jahresganges der zehn Stationen (Abbildung 2.42) mit dem Jahresgang der Station eins (Abbildung 2.41 - Station (1) : Mainz) zeigt eine gute Übereinstimmung sowohl für den Wertebereich von AOD_{Dust} (von 0,008 bis 0,04), als auch in der Korrelation der Monatsmittelwerte ($R^2 = 0,79$, $n = 12$).

Die Fragestellung, in wie weit die Messstation Kleiner Feldberg eine repräsentative Wahl für Zentraleuropa ist wird im Folgenden auf Basis dieser Ergebnisse behandelt:

Vorausgesetzt, dass in der weiteren Region um den kleinen Feldberg der Ferntransport für den Mineralstaubanteil am Aerosol maßgeblich ist, können die Daten der AERONET-Station Mainz (in einem Abstand zum Kleinen Feldberg von ca: 30 km) gemeinsam mit den Messdaten am kleinen Feldberg als spezifisch für die Region betrachtet werden.

Diese Interpretation wird durch folgende Ergebnisse bestätigt:

1. In Kapitel 2.4. dieser Arbeit wurde nachgewiesen, dass die Eiskeimkonzentration am Kleinen Feldberg mit vorhandenen Messwerten von AOD_{Dust} der Station Mainz signifikant korreliert sind ($R^2 = 0,7$, vgl. Abbildung 2.19).
2. Darüber hinaus wurde in Kapitel 2.3.2 anhand von Daten der Bodenfeuchte ausgeschlossen, dass die Eiskeim-Messergebnisse am Kleinen Feldberg durch Aufwirbelung von Mineralstaub aus der Region dominiert wird.
3. Der Vergleich des ausgeprägten Jahresganges für die Eiskeimkonzentration mit den langjährigen AOD_{Dust} Monatsmittelwerten basierend auf Messung und Modellierung impliziert, dass die Jahresgänge von einem jährlichen Zyklus des Mineralstaubferntransport geprägt sind. (Abbildung 2.21, Kapitel 2.4)

Für die weiteren neun AERONET-Stationen aus Zentraleuropa, kann in der Einzelbetrachtung der Jahresgänge prinzipiell der Einfluss regionaler Mineralstaubquellen am jeweiligen Standort nicht ausgeschlossen werden. Jedoch zeigen die Jahresgänge der Stationen (1) bis (8), wie zuvor erwähnt, einige Ähnlichkeiten in der Ausprägung, die von einem überregionalen Einfluss durch Mineralstaubferntransport bewirkt sein können.

Für die Beurteilung der vorhandenen Abweichungen zwischen den Jahresgängen verschiedener Stationen muss man die Datengrundlage berücksichtigen:

Die Messungen und Berechnungen des Parameter AOD_{Dust} von den verschiedenen zentraleuropäischen AERONET-Stationen liegen in jeweils unregelmäßigen Zeitabständen vor und die Messzeiten sind europaweit nicht untereinander synchronisiert.

Der Gesamtzeitraum, für den Sonnenphotometer-Daten an verschiedenen Stationen verfügbar sind, ist ebenfalls nicht identisch.

In der vorliegenden Arbeit wurde deshalb der Ansatz gewählt, Daten über den jeweils verfügbaren Zeitraum (mehrere Jahre) für die Berechnung der Monatsmittelwert einzubeziehen, um jeweils eine ausreichende Datenbasis für einen mittleren Jahresgang zu erhalten.

Dennoch kann damit nicht vollständig verhindert werden, dass die unterschiedliche Datenlage bei den einzelnen Stationen als zusätzlicher Einfluss auf die Monatsmittelwerte und den jeweiligen Jahresgang wirken kann. Ein solcher Einfluss ist dann unabhängig von dem ursächlichen Zusammenhang mit dem Staubgehalt in der Atmosphäre.

Unter Berücksichtigung dieser Zusammenhänge kann man anhand Abbildung 2.41 im Vergleich der Jahresgänge der zehn Stationen zunächst erkennen, dass die Region Kleiner Feldberg - Mainz in Zentraleuropa in Bezug auf die Monatsmittelwerte von AOD_{Dust} keine besondere Ausnahmestellung besitzt.

Aufgrund der Ähnlichkeit des Jahresgangs der Station Mainz zum mittleren Jahresgang (Abbildung 2.42), belegt durch die zuvor angeführte signifikante Korrelation und den ähnlichen Wertebereich für AOD_{Dust} , wird die Region kleiner Feldberg / Mainz in der vorliegenden Studie des weiteren als eine repräsentative Region für Zentraleuropa in Bezug auf den Mineralstaubferntransport betrachtet..

In Abbildung 2.40 wurden drei weitere europäische Stationen (A, B, C) durch rote Markierungen gekennzeichnet, die sich durch einen größeren geographischen Abstand zueinander und zum Messstandort am Kleinen Feldberg auszeichnen.

Für diese Stationen wurde ebenfalls der Jahresgang von AOD_{Dust} anhand der verfügbaren AERONET-Daten berechnet.

Ein Vergleich dieser Jahresgänge zeigt deutlich eine Abnahme von AOD_{Dust} mit zunehmender Entfernung von den afrikanischen Quellgebieten. So liegt der höchste durchschnittliche Monatswert in El Arenosilo in Spanien (Station B Abb. 2.40) bei 0,08, während er in Chibolton (Großbritannien, Station C) 0,041 beträgt und in Toravere (Estland, Station A) nur 0,035 beträgt.

Dieser Zusammenhang (vgl. Abbildung 2.26, Kapitel 2.5.4) bestätigt zusätzlich den wesentlichen Einfluss des Ferntransports von afrikanischem Wüstenstaub für das Mineralstaubvorkommen im Aerosol Europas (anhand des Parameters AOD_{Dust}).

2.10 Zeitreihenverlauf und Telekonnektion - Indizes

Die vorangehenden Kapitel lieferten Hinweise dazu, dass die lokale Eiskeimkonzentration in der Messreihe am Kleinen Feldberg maßgeblich durch den Ferntransport von Mineralstaub beeinflusst wird. Für den Ferntransport von Wüstenstaub ist neben der Aktivität der Quellen die Groß-Wetterlage maßgeblich. Daher ist die Betrachtung von Indizes, die im kausalen Zusammenhang mit der großräumigen Wetterlage über Europa und dem Atlantik stehen im Vergleich zu der Zeitreihe nahe liegend.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden daher Korrelationsanalysen mit einer Reihe von so genannten „Telekonnektion“ - Indizes durchgeführt. Insbesondere wurden dabei Werte der Nordatlantik Oszillation NAO, die anhand der Luftdruckanomalien zwischen dem Islandtief und Azorenhoch berechnet wird, auf Basis von täglichen und monatlichen Werten herangezogen.

Für tägliche Werte (n=808) der NAO ergab sich keine signifikante Korrelation mit den Eiskeimkonzentrationen ($R^2=0,0057$). Tabelle 2.2 zeigt die Ergebnisse der Korrelationsanalysen für verschiedene monatliche Indizes.

Tabelle 2.2.: Korrelationskoeffizienten von monatlichen Telekonnektion-Indizes gegen Monatsmittelwerte der Eiskeimkonzentration am kleinen Feldberg 2008-2010 ($T=-18^{\circ}\text{C}$ $RH_{\text{eis}}=119\%$)

| Index | Erklärung | R | R ² |
|----------------|--|-------|----------------|
| AMO | Atlantic multidecadal Oscillation [Enfield, D.B., 2001] | 0.74 | 0.54 |
| Solar Flux | Solar Flux (10.7cm) (from the National Research Council of Canada) | -0.50 | 0.25 |
| TNA | Tropical Northern Atlantic Index [Enfield, D.B,1999] | 0.50 | 0.25 |
| TSAA | Tropical Southern Atlantic Index [Enfield, D.B, 1999] | 0.48 | 0.23 |
| NTA | NTA:North Tropical Atlantic SST Index | 0.47 | 0.22 |
| GLAMM | Globally Integrated Angular Momentum | 0.40 | 0.16 |
| QBO | Quasi-Biennial Oscillation | -0.37 | 0.14 |
| NAO | North Atlantic Oscillation From NOAA Climate Prediction Center (CPC) | -0.30 | 0.09 |
| AMM | Atlantic Meridional Mode | -0.28 | 0.08 |
| LandOcean Temp | Global Mean Lan/Ocean Temperature http://data.giss.nasa.gov/gistemp/ . | 0.26 | 0.07 |
| NAO (jones) | North Atlantic Oscillation From CRU | -0.17 | 0.03 |
| Sahel Rainfall | Sahel Standardized Rainfall (20-8N, 20W-10E) | -0.06 | 0.00 |
| AO | Arctic Oscillation | -0.06 | 0.00 |

Zusätzlich wurde noch der Blocking Index, ein Maß für die Stagnation von Strömungsmustern ([Tibaldi Molteni, 1990]; [Lejenas and Okland, 1983]) für verschiedene Längengradbereiche berechnet, ebenso der North-Sea-Caspian Index, der auf Geopotential-Differenzen beruht [Kutiel and Benaroch, 2002]. Es wurden hier jedoch keine signifikanten Korrelationen gefunden. Von den untersuchten Indizes scheint allein die Atlantische Multidekaden Oszillation („Atlantic Multidecadal Oszillation“, AMO) in einem möglichen direkten Zusammenhang zum Verlauf der gemessenen Eiskeimkonzentrationen zu stehen.

2.10.1 Atlantische Multidekaden Oszillation

Die Atlantische Multidekaden Oszillation (AMO) bezeichnet eine Zirkulationsschwankung der Strömungen innerhalb des Nordatlantiks, die in Zyklen auftritt. Dies wirkt sich auf die Meeresoberflächentemperaturen des nordatlantischen Beckens aus. Durch die Kopplung von Ozean und Atmosphäre beeinflusst die AMO somit auch die Atmosphäre über dem Atlantik, in Amerika und Europa. Die positiven Phase der AMO geht mit einer stärkere thermohalinen Zirkulation einher, dabei wird der Wärmetransport aus den Tropen in den Nordatlantik verstärkt.. Analog führt eine gebremste Zirkulation zu negativen Werten der AMO ([Pearce, 2008];[Dijkstra, 2006], [Knight, 2005]).

Auswirkungen der warmen Phase der AMO sind Trockenzeiten im Mittleren Westen und Südwesten der USA. Dagegen kommt es in Europa und Nordwesten der USA Europa zu mehr Niederschlag (besonders im Sommer). Die Anzahl der starken Hurrikane nimmt zu. Die Niederschlagsmengen in der Sahelzone sind höher. Dadurch ist eigentlich eine geringere Emission von Saharastaub zu erwarten [Chiapello, 2005], [Tegen, 2009]. Chiapello et al. weisen für eine Korrelation zwischen Trockenphasen in der Sahelzone und Staubmengen auf Barbados nach.

Der Jahrgang der IN-Konzentration könnte möglicherweise aber zum Teil dadurch erklärt werden, dass bei warmen Phasen der AMO auch ein größerer Anteil des Saharastaubs weiter nach Norden in die Westwindzone transportiert wird.

Abbildung 2.43 zeigt den Verlauf der Monatswerte der Atlantischen Multidekaden Oszillation und der mittleren Eiskeimkonzentration am Kleinen Feldberg.

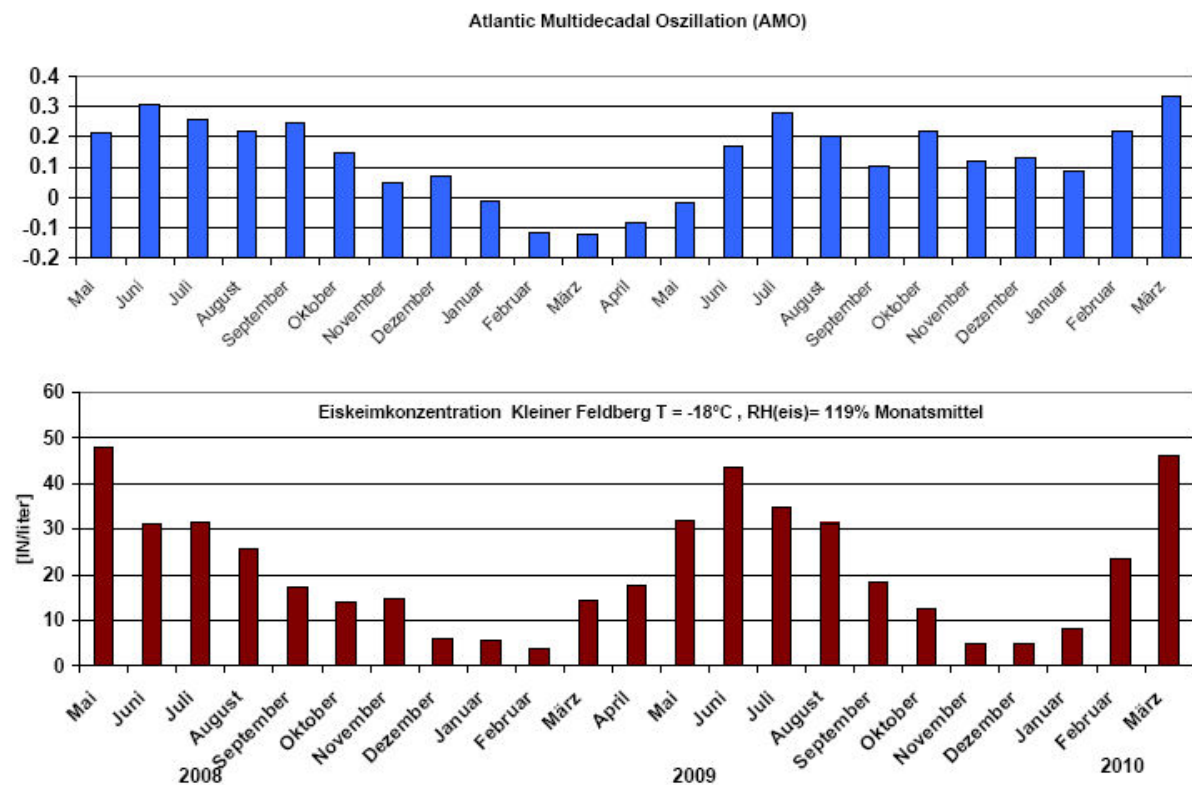


Abbildung 2.43:

(oben) Saisonaler Verlauf der Atlantic Multidecadal Oscillation (AMO) nach Enfield [2001] von Mai 2008 bis März 2010.

(unten) Saisonaler Verlauf der Monatsmittel der Eiskeimkonzentration am Kleinen Feldberg bei $T_{Akt} = -18^{\circ}\text{C}$ und $RH_{Eis} = 119\%$.

Bei einem visuellen Vergleich der Zeitreihen, erkennt man, dass sie um einen Monat gegeneinander verschoben scheinen.

Verwendet man die Daten des nachfolgenden Monats der AMO verbessert sich die Korrelation. Ebenso gibt es eine deutliche Verbesserung, wenn man die Messtage mit Einfluss von direkten Saharastaubtransport (vgl. Abbildung 2.30, (der „mediterrane“ Transportweg) ausschließt.

Abbildung 2.44 zeigt eine Gegenüberstellung dieser Werte und ein Näherungs-Polynom zweiter Ordnung.

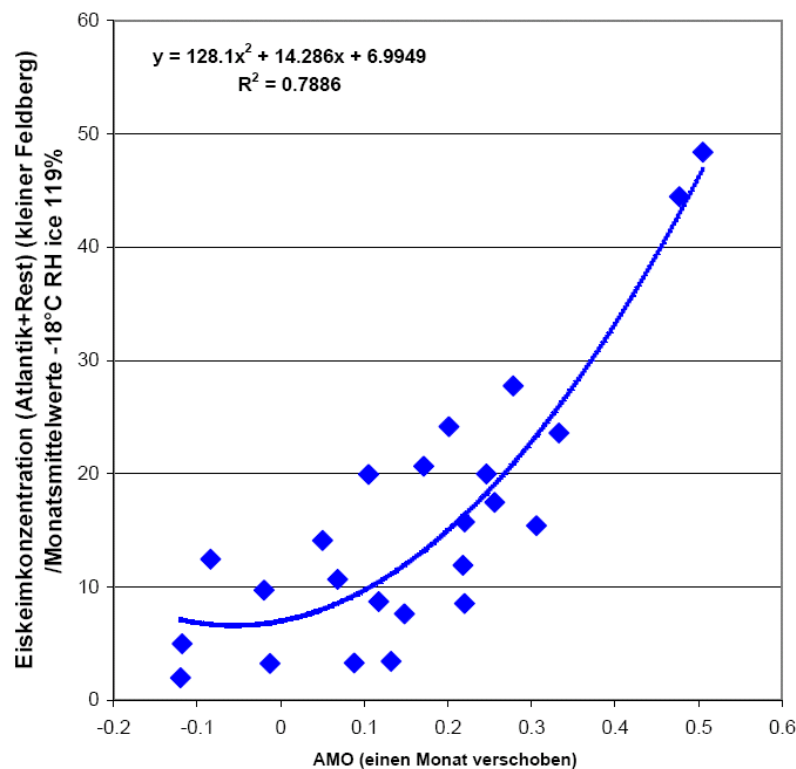


Abbildung 2.44

Scatterplot der Monatsmittelwerte der Eiskeimkonzentrationen über 2 Jahre - ohne direkte Staubereignisse (vergleiche Abbildung 2.30 , Kapitel 2.6), aufgetragen gegen den Atlantik Multidecadal Oszillation-Index (jeweils einen Monat später) ($n=24$). Zusätzlich eingezeichnet ist ein Näherungspolynom 2. Ordnung ($R=0.89$; $R^2=0,79$).

Wie im Kapitel 2.5.6 erwähnt, fanden *Huang et al.* [2010] Ähnlichkeiten in der Verteilung von atmosphärischen Wasserdampf und Mineralstaub über dem Atlantik. Ein Zusammenhang zu der Wasserdampfverteilung und der Meeresoberflächentemperatur des Atlantik (und somit dem AMO - Index) scheint nicht ausgeschlossen.

Unabhängig von diesem möglichen Zusammenhang der IN-Konzentration zur Atlantischen Multidekaden-Oszillation werden im folgenden Kapiteln Indikatoren für die Eiskeimkonzentration vorgestellt. Damit soll die Frage untersucht werden, welche Daten als Proxies für die Eiskeimkonzentration in Frage kommen.

2.11 Indikatoren

Ein Aspekt dieser Arbeit bestand darin zu untersuchen, ob die Eiskeimkonzentration der Messreihe belastbare Korrelationen zu anderen messbaren Parametern aufweist, die als sogenannte „Proxies“ verwendet werden können. Dieser Ansatz ist insbesondere für eine mögliche Parametrisierung der Eiskeimkonzentration wertvoll, da für die Messung der räumlichen Verteilung der Eiskeimkonzentrationen derzeit keine routinemäßigen Meßverfahren verfügbar sind

2.11.1 Wetterlagenklassifikationen

Die Zusammensetzung des Gesamtaerosols am kleinen Feldberg ist neben lokalen Einflüssen deutlich vom Ursprung der Luftmasse geprägt, so sind am kleinen Feldberg. z.B. während dem „Feldberg Aerosol Characterisation Experiment“ (*FACE*) Kampagne mit einem AMS bei verschiedenen Wetterlagen unterschiedliche Aerosolzusammensetzungen gemessen worden [Dusek *et al.*, 2006]. Dass die Fraktion der Eiskeime ebenfalls vom Ursprung der Luftmasse beeinflusst werden kann, zeigen die maximalen Peaks während Staub-Ferntransport aus nordafrikanischen Wüstengebieten. Für eine detaillierte Analyse wurden die Eiskeim-Messungen den jeweiligen Wetterlagen nach Hess (siehe Tabelle 2A.1 im Anhang) zugeordnet. Abbildung 2.45 zeigt das Ergebnis in Form von mittleren Konzentrationen für verschiedene Zirkulationsformen und Wetterlagen. So sind die Eiskeimkonzentrationen bei meridionaler Zirkulation im Mittel höher als bei einer zonalen Strömung (siehe Abbildung 2.45 a) Die höchsten Eiskeimkonzentrationen sind in der Regel so bei einer zyklonalen Südostlage zu erwarten, während bei einer antizyklonalen Nordwestlage sehr geringe Konzentrationen zu erwarten sind. Generell sind östliche meridionale Zirkulationen gegenüber dem Fall einer zonalen Zirkulation in Bezug auf die Eiskeimkonzentration erhöht (Abbildung (B)). Eine Prognose der Eiskeimkonzentration, die sich alleine auf Verwendung der dieser Wetterlagenklassifizierungen stützt, ist jedoch nicht verlässlich, wenn man die Fehlerbalken z.B. bei „Südostlage zyklonal“ (*Sez*), „Nordlage antizyklonal“ (*Na*) , „Hoch Fennoskandinaven, zyklonal“ (*HFz*) in Abbildung 2.45 c) berücksichtigt..

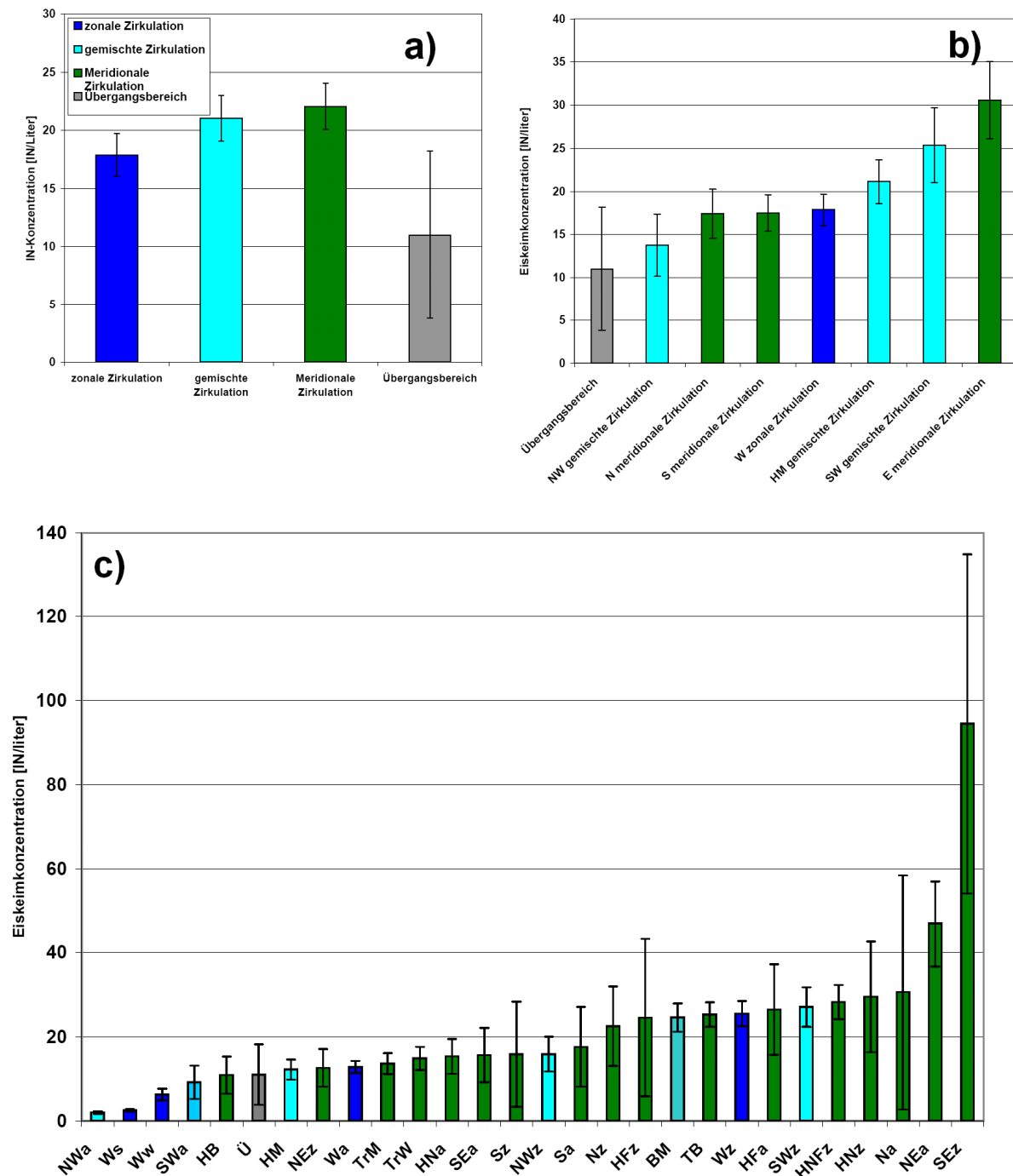


Abbildung 2.45 (a) mittlere Eiskeimkonzentration der gesamten Zeitreihe für verschiedene Zirkulationsformen
 (blau=zonale, türkis= gemischt, grün =meridional, grau =Übergangsbereich)
 (b) Mittlere Eiskeimkonzentration nach Wetterlagen aufgeschlüsselt in 8 Unterklassen
 (c) Mittlere Eiskeimkonzentration und Fehler nach einzelnen Wetterlagenklassen (Hess)
 Die Fehlerbalken entsprechen der Variation, berechnet gemäß des Standardfehlers des Mittelwerts (σ/\sqrt{n})

Für das Jahr 2008 wurden zu jeder der Messungen am Kleinen Feldberg darüber hinaus die zugehörige Wetterlagenklasse nach Jenkinson-Collison [Jenkinson, 1977] in Mitteleuropa bestimmt und die mittlere Konzentration der verschiedenen Klassen bestimmt. Die Berechnungen der Wetterlagenklassifikationen wurden im Rahmen des COSMO-Projektes

von *Tim Böhne* zur Verfügung gestellt und beruhen auf der räumlichen Verteilung der Druckgebiete über Mitteleuropa. Dabei werden anhand der Druckverteilung an äquidistanten Gitterpunkten über Mitteleuropa Werte der Scherungsvorticity und der Flusstärke abgeleitet. Für das Zentrum des verwendeten Gitters kann dann anhand des Verhältnisses dieser Größen zueinander eine Einteilung in Wetterlagenklassen vorgenommen werden [DeMuzere, 2006]. Es ergibt sich auf diesem Wege schließlich eine Unterteilung in 8 direktionale Klassen, die nach den entsprechenden Himmelsrichtungen eingeteilt sind, sowie eine zyklonale (C) und eine antizyklonale (A) Wetterlagenklasse und eine unbestimmte Klasse (U).

Abbildung 2.46 zeigt die mittlere Eiskeimkonzentration für die 11 Jenkinson-Collison Wetterlagenklassen, mit dem jeweiligen Fehler des Mittelwertes.

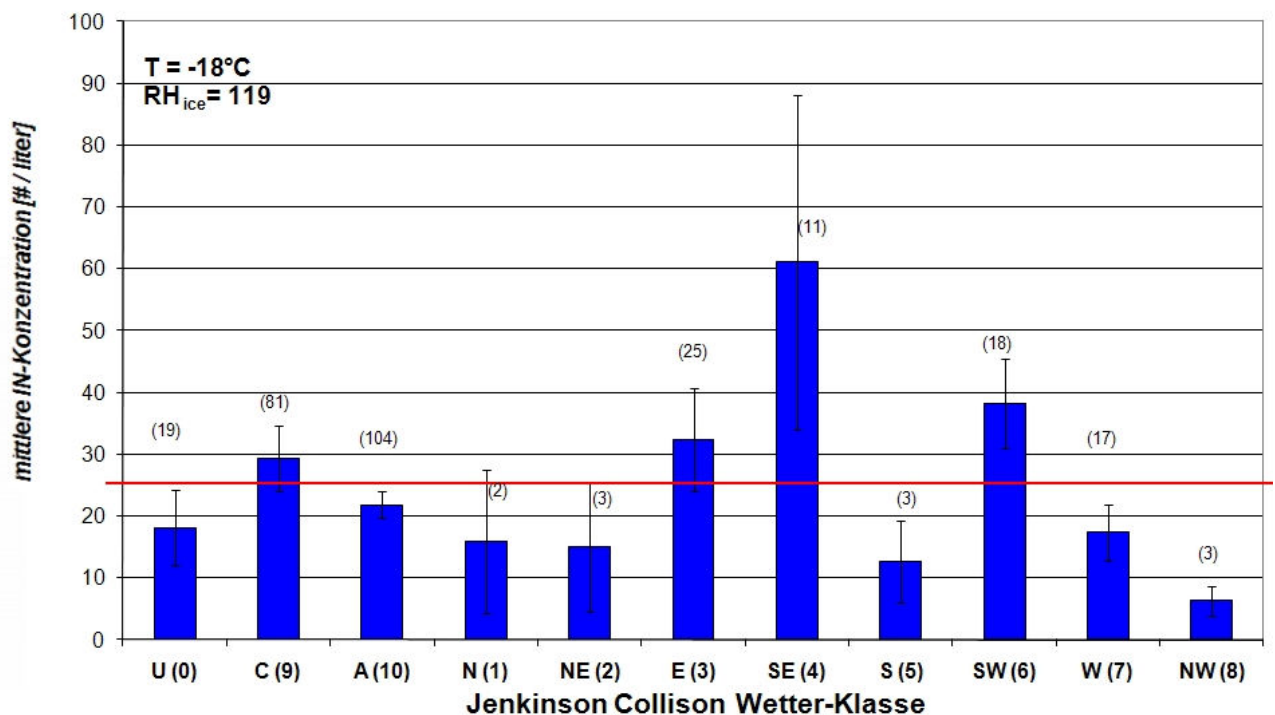


Abbildung 2.46: mittlere Eiskeimkonzentrationen (Jahr 2008) für die 11 Jenkinson-Collison Wetter-Klassen (Jenkinson, 1977) und Gesamtmittelwert (rot). Die Fehlerbalken entsprechen der Variation, berechnet gemäß des Standardfehlers des Mittelwerts (σ / \sqrt{n}). Zusätzlich ist die Probenanzahl in Klammern angegeben.

In einer klimatologischen Untersuchung der Deposition von Mineralstaub anhand Modelldaten der Jahre 1960-2000 und den Jenkinson-Collison Wetterklassen (abgeleitet von dem *ECHAM 5* Modell) fanden *DeMuzere et al.* [2006] für Zentraleuropa hohe positive Korrelationen für die zyklonale Klasse (9) und negative Werte für die antizyklonale Klasse. Die mittleren Eiskeimkonzentrationen der Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zeigen entsprechend höhere Werte für die zyklonale Klasse als für die antizyklonale Klasse.

Auffällig sind die relativ hohen Variationen der Eiskeimkonzentrationen innerhalb der einzelnen Wetterlagenklassen, die zu einer beträchtlichen Streuung des Mittelwertes führen.

Bei der Interpretation beachten, dass es sich um eine mehr regionale Wetterlagenklassifikation für Zentraleuropa (45°N - 57°N) handelt, bei welcher der Ferntransport nicht ausreichend repräsentiert wird.

Die Verwendung der Jenkinson Collison Wetterlagenklassen als alleiniger Indikator für die Eiskeimkonzentrationen ist daher nicht ausreichend. Daraus ergibt sich der Ansatz eine

Einteilung der Messdaten nach den Zugbahnen der Luftpakete anhand von Rückwärtstrajektorien durchzuführen.

2.11.2 Rückwärtstrajektorienklassen

Anhand täglicher Rückwärtstrajektorien des DWD (Trajektoriendauer : 5 Tage) wurden die gemessenen Eiskeimkonzentrationen jeweils einem der 7 Trajektorien-Sektoren in Abbildung 2.47 zugeordnet. Dort sind die Mittelwerte der Eiskeimkonzentrationen und ihre Fehler (bei einer Aktivierungstemperatur von $T_{akt} = -18^{\circ}\text{C}$ und der Eisübersättigung, $RH_{Eis} = 119\%$) angegeben.

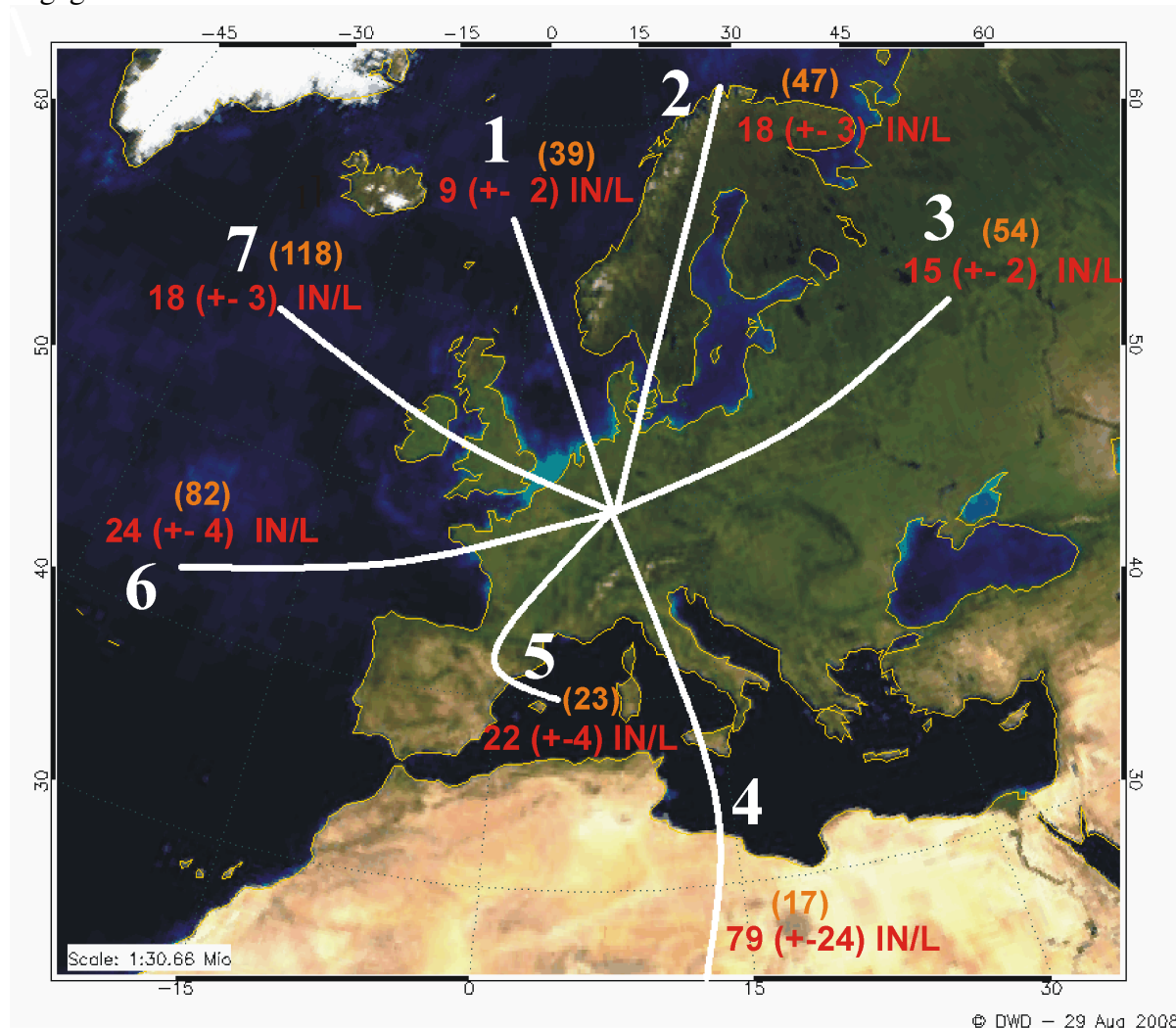


Abbildung 2.47.: Mittlere Eiskeimkonzentrationen (rot) für einen Jahresgang (2008-2009) klassifiziert nach Trajektorien-Sektoren (weiß). (basierend auf DWD COSMO Rückwärtstrajektorien) Die Anzahl der jeweiligen Proben ist zusätzlich angegeben (orange Zahlen) Die Fehlerbereiche entsprechen der Variation, berechnet gemäß des Standardfehlers des Mittelwerts (σ / \sqrt{n})

Besonders markant ist die überdurchschnittliche Eiskeimkonzentration der Klasse (4), deren Trajektorien in vielen Fällen bis nach Nordafrika reichten, und direkten Transport von Mineralstaub zur Messstelle anzeigten.

Im Gegensatz dazu zeigt die Luftmasse, die aus den Polargebieten über die Nordsee bis nach Frankfurt transportiert wurde, den geringsten Wert.

Transportwege, die aus westlicher oder südwestlicher Richtung die Station Kleiner Feldberg erreichten zeichnen sich durch höhere Konzentrationsmittelwerte aus als östliche oder

nördliche Luftmassenzugpfade. Dies steht im Einklang mit der in Kapitel 2.5.4 erläuterten Mineralstaub-Ferntransport auf indirektem Wege über den Atlantik. Auch wenn die mittleren Fehler der Konzentrationen zum Teil deutlich geringer ausfallen, als bei den Wetterlagenklassen, ist die Variabilität innerhalb dieser Trajektorien-Klassen unzureichend, um mit diesem Indikator alleine die Eiskeimkonzentration sicher bestimmen zu können.

2.11.3 Partikelgrößenklassen

Abbildung 2.48 ([DeMott, 2006] – ergänzt mit Daten von *FRIDGE*) zeigt das Verhältnis der Eiskeimkonzentration ($T=-13^{\circ}\text{C}$, 103 % RH) zur Aerosolanzahlkonzentration großer Partikel mit einem Durchmesser $d > 0.5\mu\text{m}$, basierend auf Messungen mit einer Continuous-Flow-Diffusion-Chamber (*CFDC*). Zusätzlich eingezeichnet wurden die Monatsmitteldaten der *FRIDGE*-Messungen am Taunus Observatorium 2008/2009, die gemäß der Parametrisierung von Meyers *et al.* [1992] ausgehend von dem Messpunkt -13°C RH = 99.5% auf die Bedingungen -13°C RH=103% angepasst wurden. Die Partikelkonzentrationen stammen aus Messungen mit dem Aerosol Particle Sizer 3221 (TSI-Inc). Man erkennt, dass die *FRIDGE* Monatsmittelwerte für den Kleinen Feldberg oberhalb der von DeMott angegebenen exponentiellen Näherungsfunktion liegen. Das bedeutet, dass im Verhältnis zu der Aerosol-Anzahlkonzentration von Partikeln mit $d > 0,5\mu\text{m}$ die Eiskeimkonzentrationen der *FRIDGE*-Analysen geringer ausfallen, als man anhand des exponentiellen Fit erwarten würde.

Eine mögliche Erklärung dafür ist, dass in die Berechnung der Näherungskurve von DeMott [2006] Daten aus Messungen von Saharastaub eingehen (*Crystal-SAL* gekennzeichnet durch grüne Kreise), die sich im Allgemeinen durch besonders hohe Eiskeimkonzentrationen auszeichnen (z.B. [Mason, 1958]; [Zobrist, 2007]) und deshalb womöglich nicht repräsentativ für die durchschnittlichen IN-Konzentrationen des Aerosols in Mitteleuropa sind. Zum Vergleich wurde ein Maximum der Eiskeimkonzentration am Kleinen Feldberg aus den Daten des Saharastaub-Ereignis vom 29.5.2009, mit den entsprechenden modellierten Staub-Anzahlkonzentrationen (Durchmesser $d>0.5\mu\text{m}$) eingezeichnet (grünes Dreieck). Dieser Datenpunkt passt sehr gut zu den *Crystal-SAL* Daten. Wie DeMott *et al.* [2006] in ihrer Veröffentlichung anmerken, sind weitere Eiskeimmessdaten dringend notwendig um ein vollständigeres Bild der Abhängigkeit der Eiskeimkonzentration von der Anzahlkonzentration großer Partikel zu bekommen. Die Monatsmittelwerte der Messungen am Kleinen Feldberg können dazu einen Beitrag leisten. Sie zeigen, dass die exponentielle Näherungs-Funktion die Eiskeimkonzentration bei größeren Aerosolkonzentrationen möglicherweise überschätzt, wenn es sich nicht um reines Mineralstaubaerosol handelt.

Als Indikator bietet die Aerosolkonzentration einer bestimmten Größenklasse einen empirischen Ansatz, der die Partikelgröße als einen wichtigen mikrophysikalischen Parameter berücksichtigt. Für eine exaktere Behandlung ist es einerseits wesentlich, die maßgebliche Größenklasse enger einzugrenzen, und andererseits weitere mikrophysikalische Aerosoleigenschaften mit einzubeziehen. Daher werden im Folgenden gemessene Aerosolgrößenspektren genauer auf ihre Beziehung zu den Eiskeimkonzentrationen untersucht werden.

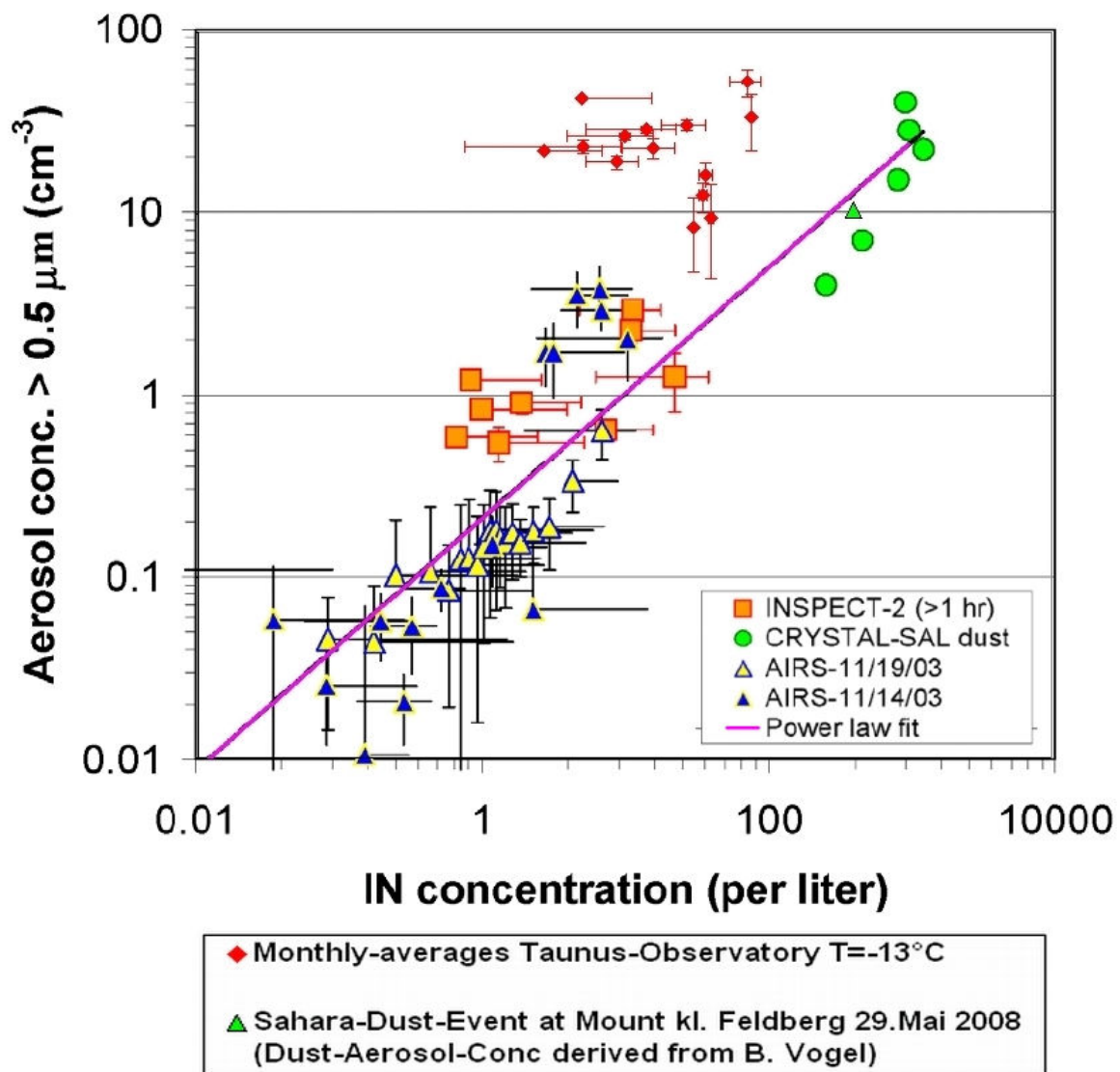


Abbildung 2.48: nach DeMott [2006] relative Eiskeim-Konzentrationen bezogen auf die Anzahlkonzentration von Aerosolpartikeln $>0.5\mu\text{m}$ aus 3 Projekten:

AIRS 2 (im Bereich von Mischphasenwolken)

INSPECT (gemessen bei klarer Wetterlage, Storm Peak Laboratory (Colorado) April Mai 2004) [Richardson et al., 2004]

CRYSTAL FACE (innerhalb der Saharan Aerosol Layer (SAL) 2002) DeMott et al. [2003]. In violett markiert ist der exponentielle Trend (Aerosol Concentration = $0.2084 [\text{IN}]^{0.6894}$, $r^2=0.75$)

Zusätzliche Daten:

Rote Rauten sind die Monatsmittelwerte der Messungen am Kleinen Feldberg (Die Fehlerbalken entsprechen der Variation, berechnet gemäß des Standardfehlers des Mittelwerts (σ/\sqrt{n})).

Partikelkonzentrationen wurden mit einem Aerodynamic Particle Sizer (APS-3211) bestimmt

Als grünes Dreieck markiert ist das Maximum des Saharastaub Ereignisses im Mai 2008 [Klein et al., 2010 - Kapitel 5]; Partikelkonzentrationen beziehen sich auf eine Modellierung von Bernhard Vogel (Karlsruhe Institut für Technologie)

Während 236 Messtagen standen zusätzlich zu den Analysen der Eiskeimkonzentrationen verlässliche Größenspektren des Aerosols (Durchmesser > 0.36 µm, gemessen mit einem APS 3221, TSI Inc.) zur Verfügung.

Anhand der Größenspektren wurden die Aerosolmassen für sieben Größenklassen (bis zu einem Durchmesser von d = 20 µm) mit einer Standarddichte berechnet. Die Definition der Größenklassen (Bins) ist in Tabelle 2.3 angegeben. Eine Gegenüberstellung der Eiskeimkonzentration zu der Gesamtpartikelkonzentration des Kondensationskernzählers (WCPC 3785, detektiert werden Partikel mit Durchmesser d > 5 nm) ergab dagegen eine sehr niedrige Korrelation ($R^2 = 0,054$, n = 567, $\varepsilon = 2,2 \cdot 10^6 \%$).

Tabelle 2.3.: Größenklassen (bins) für Mineralstaub (DREAM-Modell) [Nickovic., 2001]

| Bin Nummer | Durchmesser (min/max) µm | Durchmesser, effektiv µm |
|------------|--------------------------|--------------------------|
| 2 | 0,36 / 0,6 | 0,5 |
| 3 | 0,6 / 1,2 | 0,9 |
| 4 | 1,2 / 2,0 | 1,56 |
| 5 | 2 / 3,6 | 2,6 |
| 6 | 2,6 / 6 | 4,4 |
| 7 | 6 / 12 | 7,6 |
| 8 | 12 / 20 | 14,2 |

Die folgende Abbildung 2.49 zeigt die Korrelationskoeffizienten, die sich zwischen der Eiskeimkonzentration (bei $T_{akt} = -18^\circ\text{C}$ und $RH_{eis} = 119\%$) und den zugehörigen Massenkonzentrationen in den einzelnen Bins ergeben. Dabei sind in Abbildung (a) die Daten für das Staub-Ereignis vom 23.5.2008 bis zum 31.5.2008 dargestellt, das auch im Kapitel 5 behandelt wird [Klein et al., 2010]. In der analogen Abbildung (b) wurden die Korrelationskoeffizienten für die ganze Zeitreihe gegen den Partikeldurchmesser der entsprechenden Größenklasse eingezeichnet.

Es zeigt sich, dass in beiden Fällen Partikel mit einem Durchmesser von 2,0 - 3,6 µm die höchste Korrelation zu den Eiskeimkonzentrationen aufwiesen. Diese Partikel befinden sich somit innerhalb des Größenbereiches, in dem z.B. auch Mineralstaubpartikel zu erwarten sind.

Darüber hinaus zeigen die Abbildungen 2.49 (a) und (b) Ähnlichkeiten.

In Kapitel 5. (Klein et al. [2010]) wird dargestellt, dass die IN-Aktivierungsspektren während des Saharastaub-Ereignisses in ihrer Form vergleichbar sind mit den IN-Aktivierungsspektren die sich aus der gesamten Jahresreihe ergeben. Es ist dabei nahe liegend, dass der Mineralstaub aus dem Ferntransport auch im Jahresmittel die Eiskeimkonzentrationen beeinflussen könnte.

Die Ähnlichkeiten in den Korrelationen zu den Größenklassen aus Abbildung 2.49 bestätigen in ähnlicher Weise diese Hypothese..

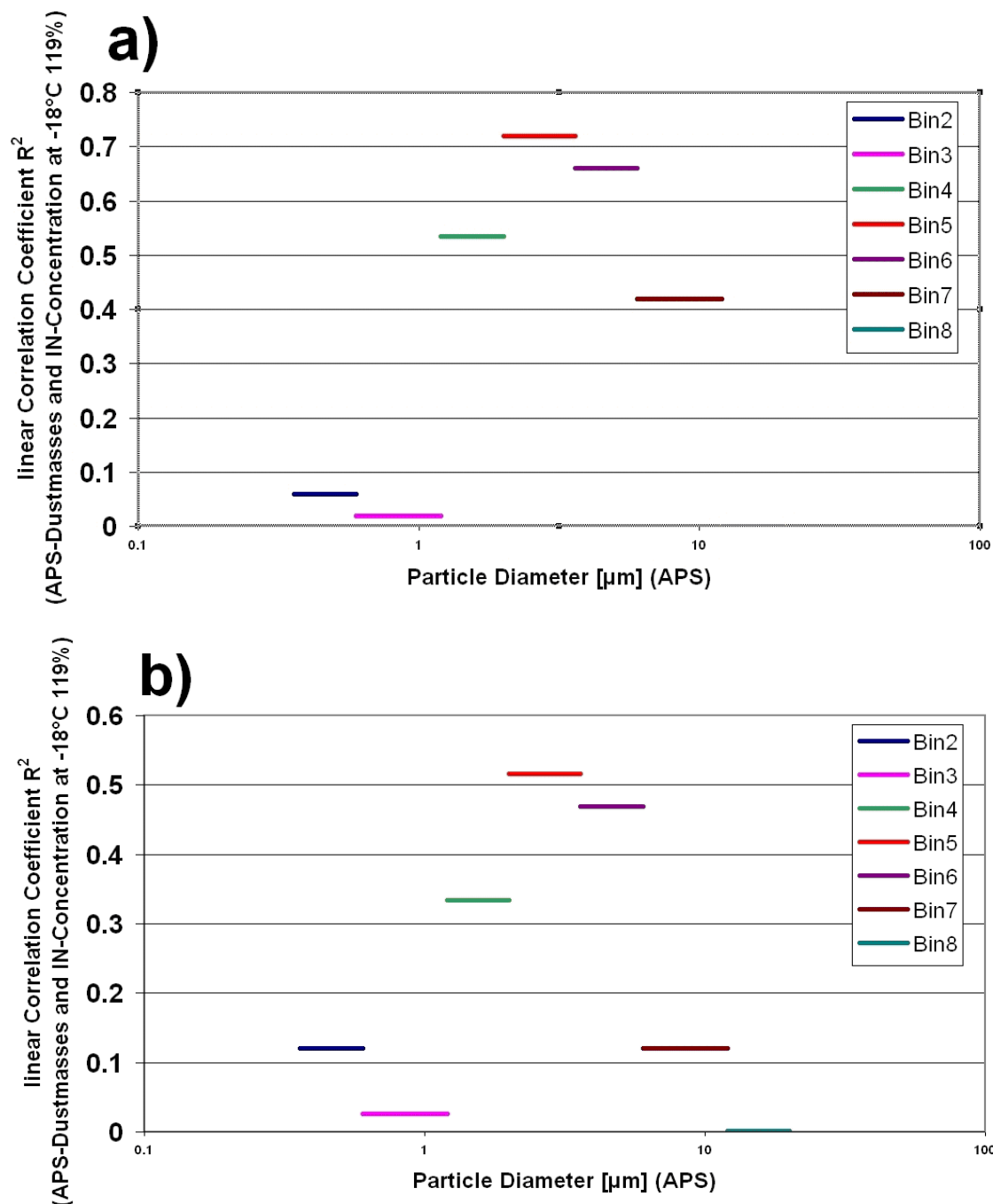


Abbildung 2.49: lineare Korrelationskoeffizienten zwischen den gemessenen Eiskeimkonzentrationen und den Aerosolmassen in verschiedenen Größenbins (Tabelle 2.3)

für den Zeitraum

(a) des Saharastaub-Ereignisses (26.Mai 2008-1.Juni. 2008)

(b) den Verlauf der Zeitreihe von April 2008 – Juni 2009

Die Korrelationskoeffizienten, die hier bezüglich der Partikelmasse in einzelnen Bins berechnet wurden, entsprechen den Korrelationskoeffizienten für die entsprechende Partikeloberfläche. Die Aerosoloberfläche ist möglicherweise ein entscheidendes Kriterium für die Eiskeimkonzentration, bedenkt man das die Zahl „aktiver Stellen“ [Fletcher, 1969] für die heterogene Nukleation auch zu der Größe der Partikeloberfläche proportional sein sollte..

2.11.4 Aerosol Optische Dicke für Mineralstaub

Die Aerosol-optische Dicke für Mineralstaub AOD_{Dust} hat als Proxy den Vorteil, dass sie in einem Messnetzwerk über Mitteleuropa verfügbar ist und mikrophysikalisch neben der Partikelgröße noch die Partikelart, in diesem Fall die mineralische Komponente, berücksichtigt. Wenn es also gelänge, belastbare empirische Beziehungen zwischen AOD und IN zu etablieren, könnte man aus den AOD-Routine Messungen bzw. aus Vorhersagen die IN bestimmen bzw. vorhersagen. Dabei ist zu berücksichtigen, dass die Aerosol-Optische Dicke eine vertikal integrierende Größe ist, während die Messungen der Eiskeimkonzentration in dieser Arbeit sich auf die Stationshöhe von 800 m beziehen. Vertikal aufgelöste Aerosolmessdaten (z.B. von einem Aerosol-LIDAR) liegen dagegen nicht in einem entsprechend engen Messnetzwerk vor und waren insbesondere nicht in Nähe zum Messstandort vorhanden.. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden sie daher nicht in Zusammenhang mit den Eiskeimmessungen am Kleinen Feldberg verwendet..

In Abbildung 2.50 sind Daten der Aerosol-Optischen-Dicke für nichtsphärische Aerosolpartikel für die Region Taunus/ Kleiner Feldberg gegen die *FRIDGE* Analysen der Eiskeimkonzentrationen (bei $T=-13^{\circ}\text{C}$ $RH=113\%$) aufgetragen. Die Daten von AOD_{Dust} wurden vom Multi-angle Imaging Spectro-Radiometer, an Bord des Terra-Satelliten des „Earth Observing System“ der NASA MISR-Instruments gemessen. Für die Korrelation wurden alle verfügbaren, zeitnahen (innerhalb weniger Stunden am selben Tag) Eiskeimdaten von April 2008- April 2009 verwendet. Es ergibt sich eine signifikante positive Korrelation ($R^2=0,7$, $n=15$, $\varepsilon=0,01\%$)

Verwendet man hingegen für dieselben Termine die Daten für die Aerosol-optische Dicke sphärischer Aerosolpartikel, so ergibt sich keinerlei Korrelation zur IN-Konzentration ($R^2=0,02$). Dies ist ein Indiz dafür, dass die atmosphärischen Eiskeime, die am Kleinen Feldberg beprobt wurden, überwiegend nicht-sphärische Partikel sind.

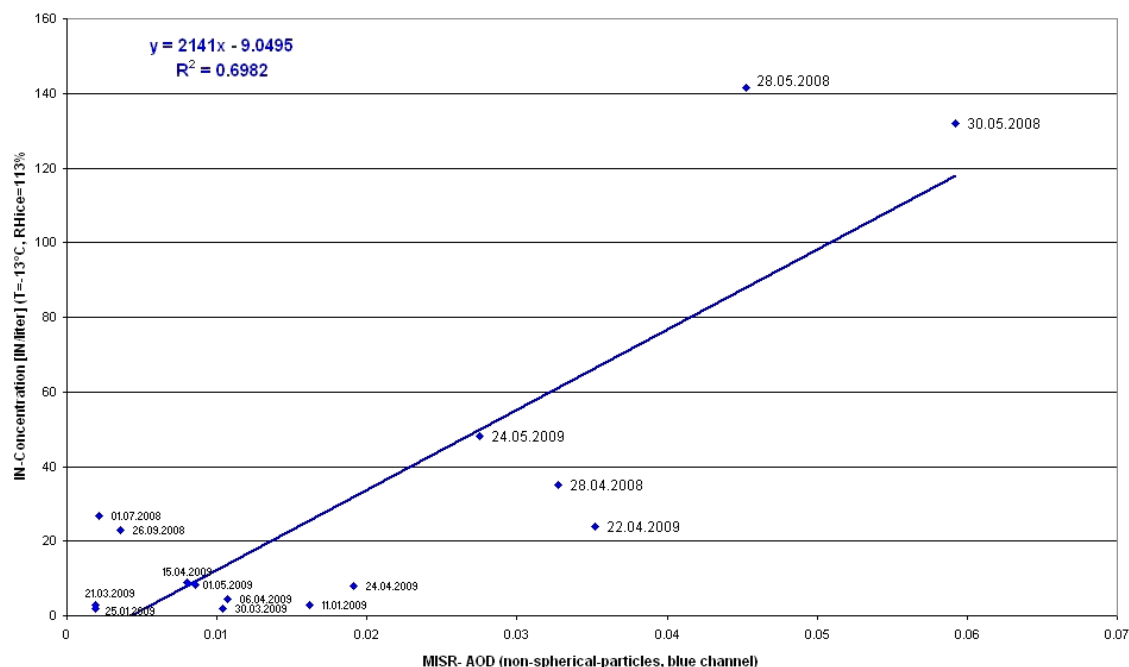


Abbildung 2.50 Streudiagramm zum Vergleich von Einzelmessungen von verfügbaren MISR AOD-Messwerten für nichtsphärische Partikel (Satellitenmessungen interpoliert auf den Gitterpunkt 50.25°N 8,5°E) und zeitnah gemessenen Eiskeim-Konzentrationen am Kleinen Feldberg (2008/09). Zusätzlich ist ein linearer Fit eingetragen (blau) ($R^2=0,7$, $n=15$, $\varepsilon=0,01\%$)

In Kapitel 2.4 (Abbildung 2.21) wurde bereits in einer Gegenüberstellung die Beziehung von Einzelmessungen von AOD_{Dust} (Mainz) mit den Eiskeimmessungen am kleinen Feldberg dargestellt. Die Regressionsgleichung liefert folgenden Zusammenhang:

$$IN_{\text{Kleiner Feldberg}} (-18^{\circ}\text{C}, 119\%) = 991.785 * AOD_{\text{Dust-coarse extinction 1020 nm}} \quad [\text{IN/Liter}] \quad (2.3)$$

mit ($R^2=0,71$, $n=26$, $\varepsilon = 6,67*10^{-4} \%$)

Im Rahmen der MISR-Datensätze wurde eine Aerosol-Klimatologie mit Monatsmittelwerten auf einem globalen Gitter mit $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ horizontaler Auflösung zur Verfügung gestellt, die die Werte für AOD_{Dust} (Partikel grober und mittlerer Größe) enthält .

Abbildung 2.51 zeigt in einem Streudiagramm den Zusammenhang zwischen den monatlichen MISR-clim-likely Daten (Vergleiche Abbildung 2.21) und den Monatsmitteln der Eiskeim-Konzentration am Taunus Observatorium (-18°C 119%) für das erste Jahre der Messreihe.

Hier ergibt sich mittels linearer Regression folgenden Zusammenhang

$$IN_{\text{Kleiner Feldberg}} (-18^{\circ}\text{C}, 119\%) = 904.4 * AOD_{\text{Dust-Coarse+Middle}} + 272 \quad [\text{IN/Liter}] \quad (2.4)$$

mit ($R^2=0.91$, $n=12$, $\varepsilon = 0,00015$)

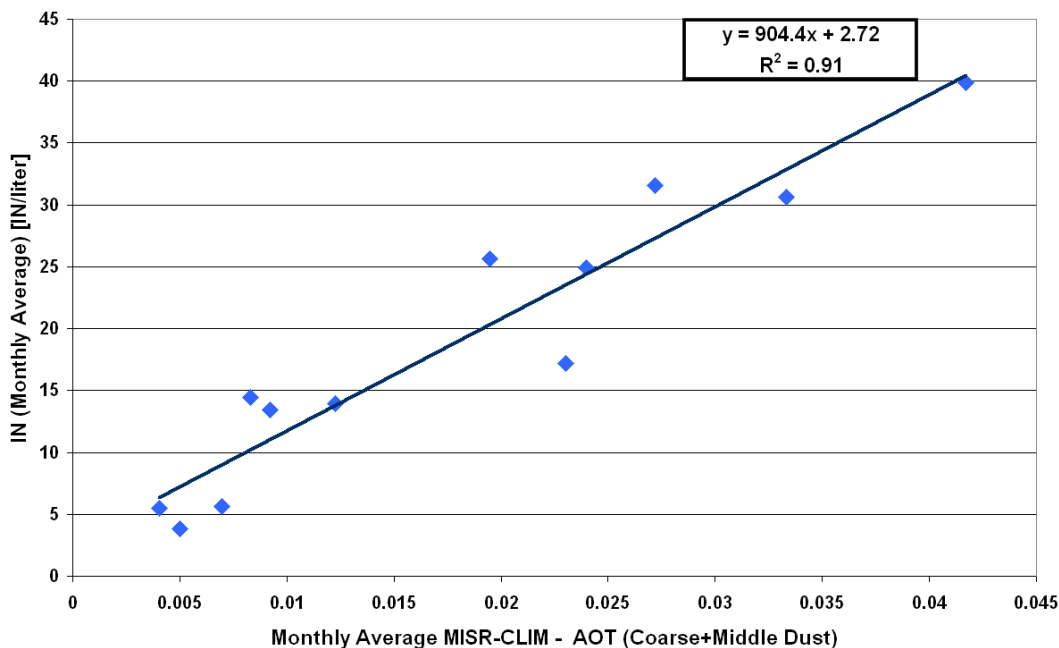


Abbildung 2.51: Streudiagramm zum Vergleich der Monatsmittelwerte der MISR-Clim-Likely AOD_{Dust} mit den Monatsmittelwerten der IN-Konzentration (2008-2009) (siehe auch Abbildung 2.21). Als Gerade eingetragen ist der lineare Trend. $R^2=0.91$ $n=12$

Entsprechend der vorangehenden Ergebnisse (Kapitel 2.4., Kapitel 2.11) ist der Mineralstaubgehalt der Atmosphäre der beste Proxy für die Eiskeimkonzentration. Im folgenden Unterkapitel wird nun anhand der Aerosol Optischen Dicke für Mineralstaub (AOD_{Dust}) eine erste Abschätzung für die durchschnittliche monatliche Eiskeimverteilung über Europa durchgeführt.

2.12 Eiskeimverteilung über Europa

Für eine schematische Abschätzung der Eiskeimverteilung über Europa anhand der Korrelationen mit AOD_{Dust} (Kapitel 2.11.4 / bzw. Anhang A3) ist die Annahme eines mittleren Vertikalprofils für Mineralstaub und Temperatur erforderlich. Für das Vertikalprofil der Temperatur wurden die Werte der ICAO-Standardatmosphäre verwendet. Danach ergeben sich entsprechend folgende Höhen für die untersuchten Aktivierungstemperaturen

Tabelle 2.4: *mittlere Höhen der Aktivierungstemperaturen gemäß der ICAO Standardatmosphäre:*

| Temperatur [°C] | Höhe [m] ICAO |
|--------------------|------------------|
| -8 | 3538.5 |
| -13 | 4307.7 |
| -18 | 5076.9 |

Für die Ermittlung des Vertikalprofils für Mineralstaub in Europa, wurde auf eine Studie von *Alpert et al.* [2003] zurückgegriffen, die anhand von Modellläufen über einen Zeitraum von 2,5 Jahren die vertikale Verteilung des Mineralstaubs über der Sahara untersucht haben. Abbildung 2.52 zeigt einen meridionalen Schnitt von 12°N bis 45°N für Juni 2001/2002 wobei über den Längsbereich von -5°O bis 5°O gemittelt wurde. Man erkennt die Quellregion in Mauretanien im Breitenbereich von 20°N.

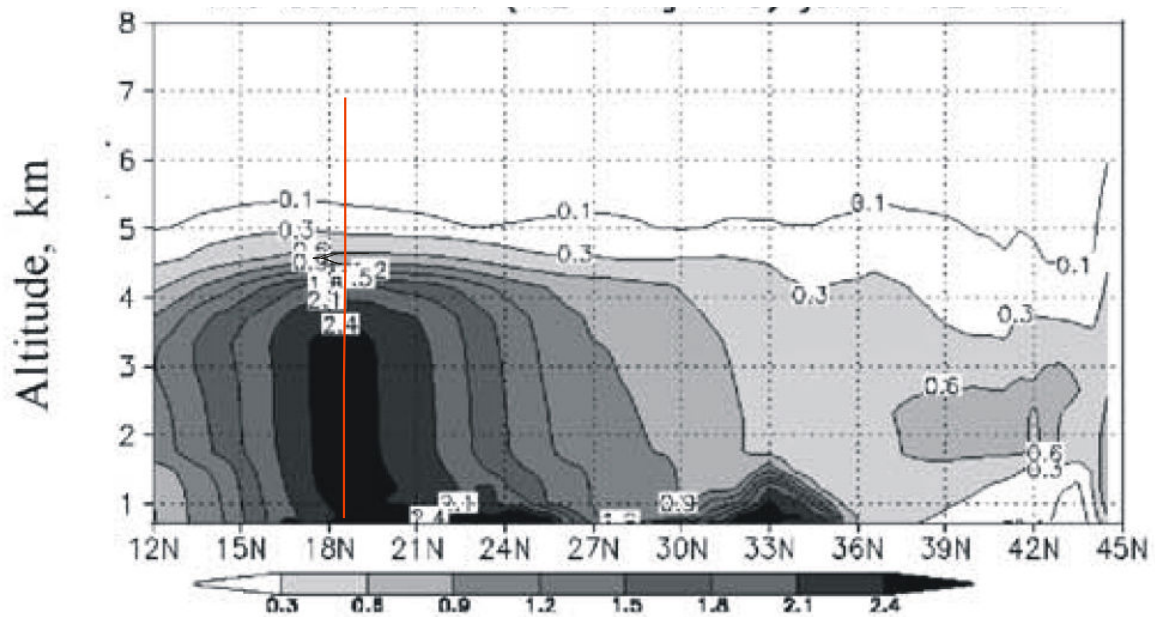


Abbildung 2.52 meridionaler Schnitt für die Staubkonzentration im Juni 2001/2002 zonal gemittelt entlang des Längenbereiches (-5°O ; 5°W) Einheiten in $1\text{E-}7 \text{ kg/m}^3$ (12 UTC), rot markiert ist die Quellregion in Mauretanien (vgl. Abbildung 2.22) (nach Alpert et al. [2003])

Die Veränderung des Vertikalprofils von Saharastaub durch den Ferntransport für verschiedene Entfernungen wurde von Schütz [1980] anhand Modellberechnungen untersucht. In Abbildung 2.53 sind die Ergebnisse für Entfernungen von 100 km bis 5000 km aufgetragen. Dabei beziehen sich die Angaben in Abbildung 2.53 in Anteilen auf das Vertikalprofil des Saharastaubs in der Quellregion.

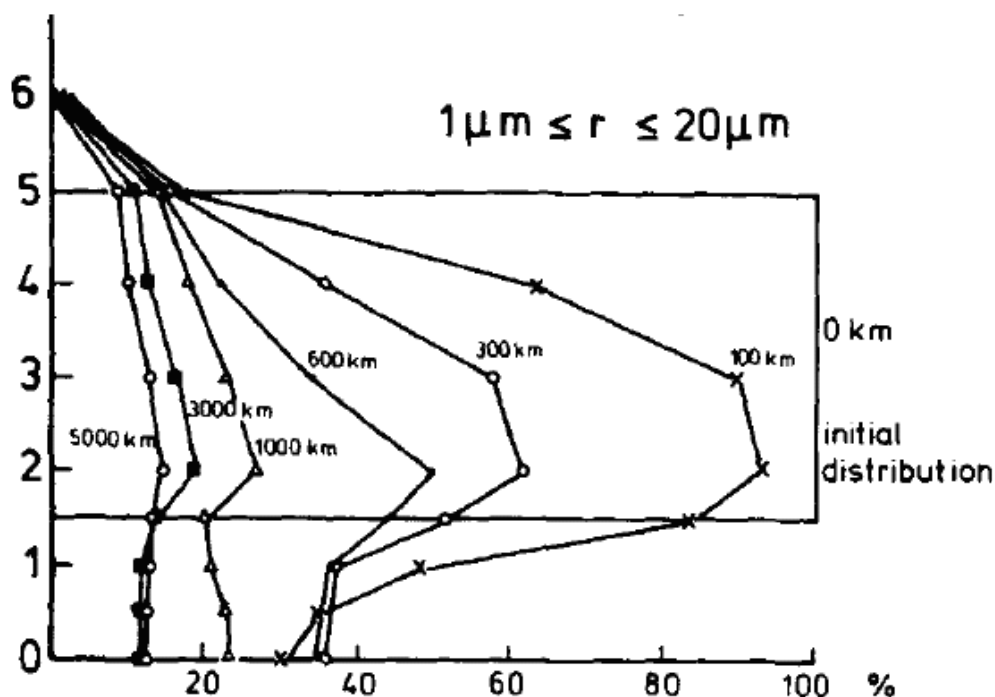


Abbildung 2.53: Vertikale Mineralstaubverteilung für verschiedene Transport-Entfernungen von der Quelle (Modell-Berechnungen) Vertikale Mischungsverhältnisse für Riesenteilchen ($>1\mu\text{m}$) bezogen auf das Initiale Mischungsverhältnis der Quellregion. (Schütz, 1980)

Für den Transportweg nach Deutschland wurde hier die Verteilung nach einem Transport über 5.000 km verwendet. Es ergibt sich das in Abbildung 2.54 (a) dargestellte angenäherte mittlere Vertikalprofil für Saharastaub ($>1\mu\text{m}$) über Europa, berechnet anhand der Quelldaten von Juli 2001/2002.

Im Vergleich dazu zeigt Abbildung 2.54 (b) Ergebnisse verschiedener Modelle für das mittlere Vertikalprofil der Mineralstaubkonzentration (gesamtes Größenspektrum) für die Region Leipzig (51,4 °N 12,4° O) basierend auf der AEROCOM - Modellvergleichsstudie. Die verschiedenen Modelle zeigen dabei zum Teil voneinander abweichende Verläufe, ein Großteil zeigt auch oberhalb von 5.5 km noch bedeutsame Konzentrationen.

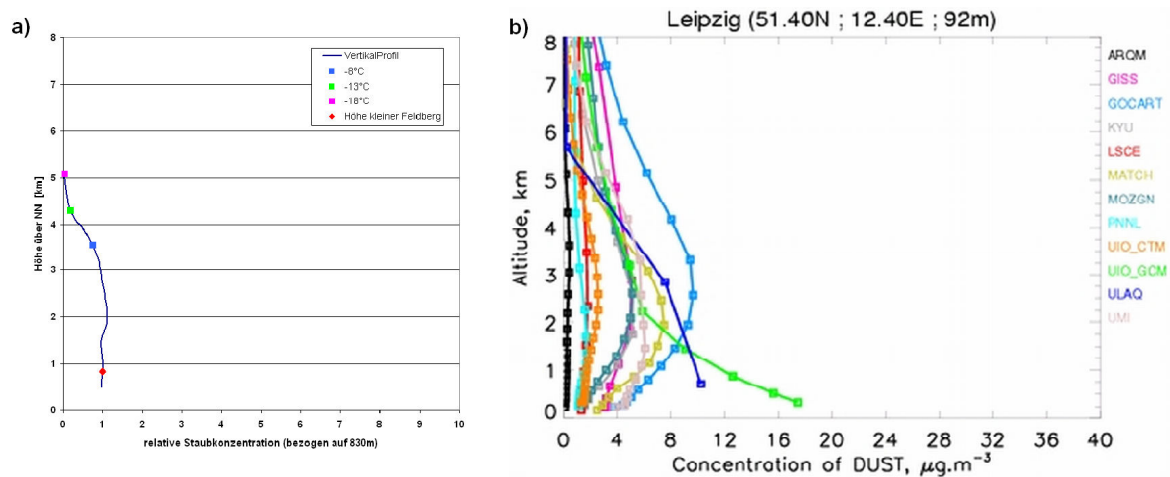


Abbildung 2.54: (a) Abschätzung des vertikalen Mineralstaubprofil [relativ zur Höhe 830m] für Juni über Europa anhand (dem Profil der Quellregion (Abb. 2.52) und der modellierten Verlagerung (Abbildung 2.53). Zusätzlich eingezeichnet sind die Höhen für die 3 Aktivierungstemperaturen (-8°C , -13°C , -18°C) gemäß der ICAO-Standardatmosphäre. (b) mittlere Vertikalprofile für Leipzig (2000) Mineralstaub verschiedener Modelle aus der AEROCOM Modellvergleichsstudie

Wie in Kapitel 2.11.3 dargestellt wurde, sind die Eiskeimkonzentrationen in der gemessenen Zeitreihe besonders zu Partikelkonzentrationen in der Klasse 2 – 3,6 μm korreliert. Entsprechend wurde die Form des Vertikalprofils (a), das sich auf Aerosolmassen ($>1\mu\text{m}$) bezieht, für die im folgende dargestellte Berechnung der Eiskeimkonzentrationen in 4300 m verwendet (ICAO Temperatur $T=-13^{\circ}\text{C}$).

Die Berechnung basiert auf Regressionsgleichungen zwischen AOD_{Dust} (MISR) und der IN-Konzentration. (siehe Anhang A2).

Unter diesen Annahmen wurden beispielhafte Monatsmittelkarten der Eiskeimkonzentration über der Region Europa/ Ostatlantik anhand der globalen Felder der MISR-Clim-likely Daten erstellt (Abbildung 2.55) .

Diese Abschätzungen der Eiskeimkonzentration beziehen sich auf eine Aktivierungstemperatur von $T=-13^{\circ}\text{C}$ in einer Höhe von 4300 m bei relativer Feuchte von $\sim \text{RH} = 99,5\%$

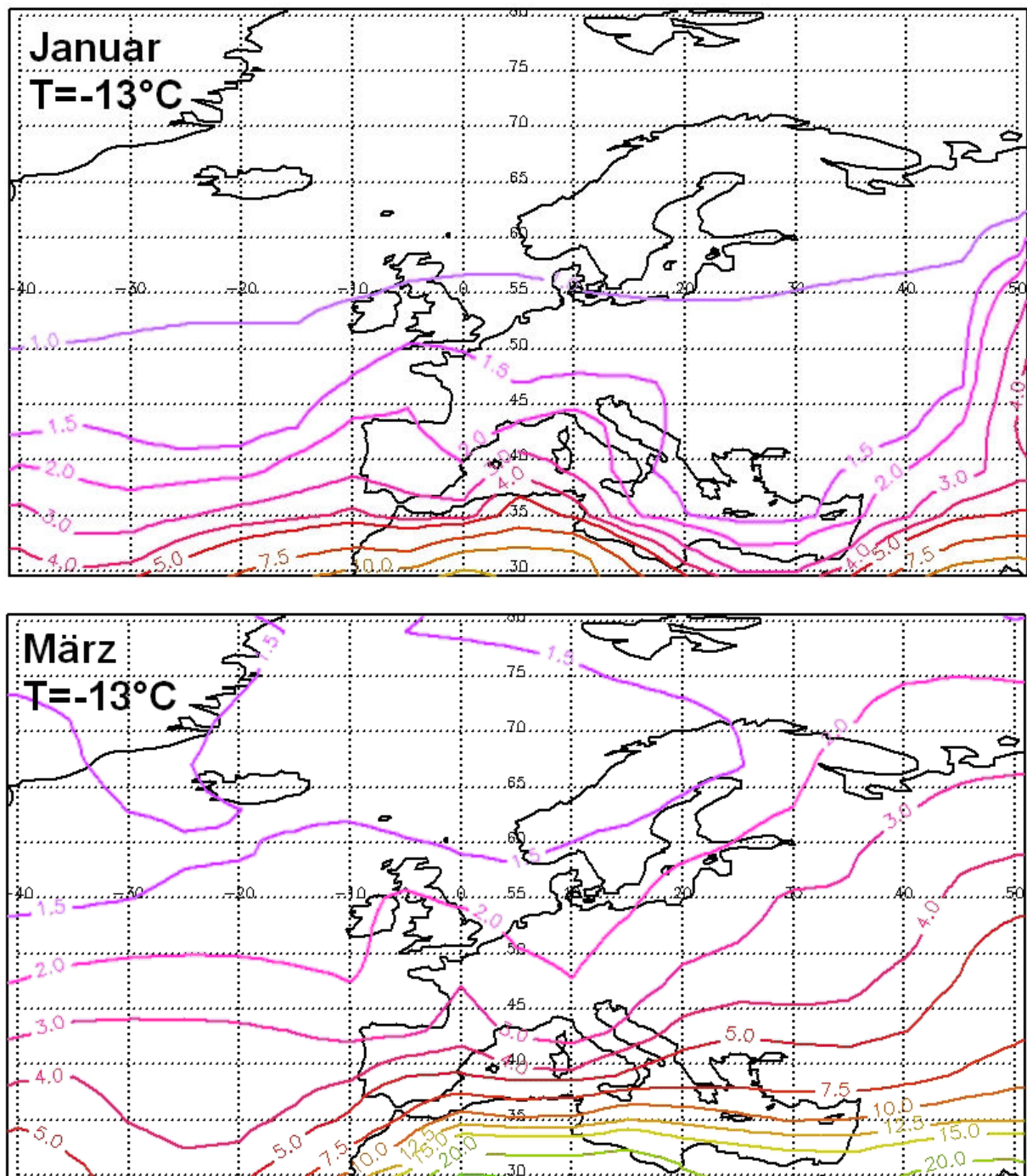


Abbildung 2.55: Abschätzung der mittleren Eiskeimverteilung für Europa in einer Höhe von 4.300 m. für oben – Januar; unten – März
 berechnet für die Bedingungen $T_{akt} = -13^{\circ}\text{C}$ Relative Feuchte = 99,5% ,
 auf Basis von MISR-clim-likely AOD_{Dust} und Gleichung (2.5), (Tabelle 2.A3)
 als Vertikalprofil für Mineralstaub wurde das Profil aus Abb 2.54 (a) angenommen.
 Den Konturen zugeordnete Zahlen entsprechen der Eiskeimkonzentration [IN/Liter]

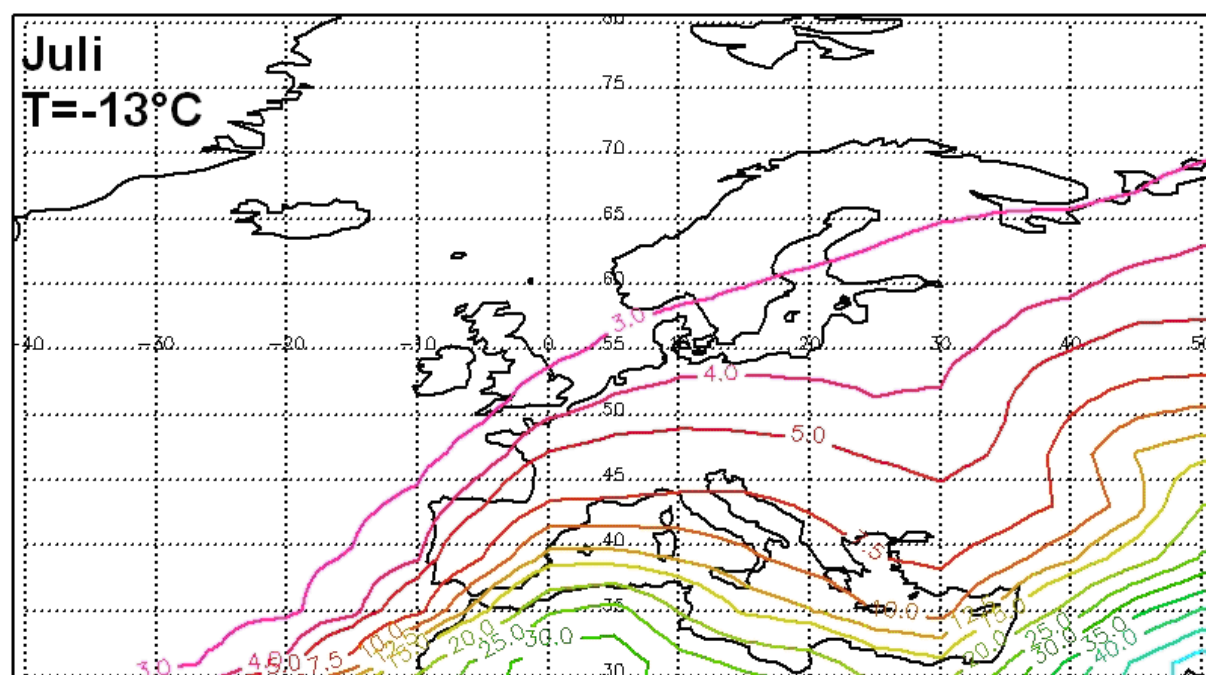
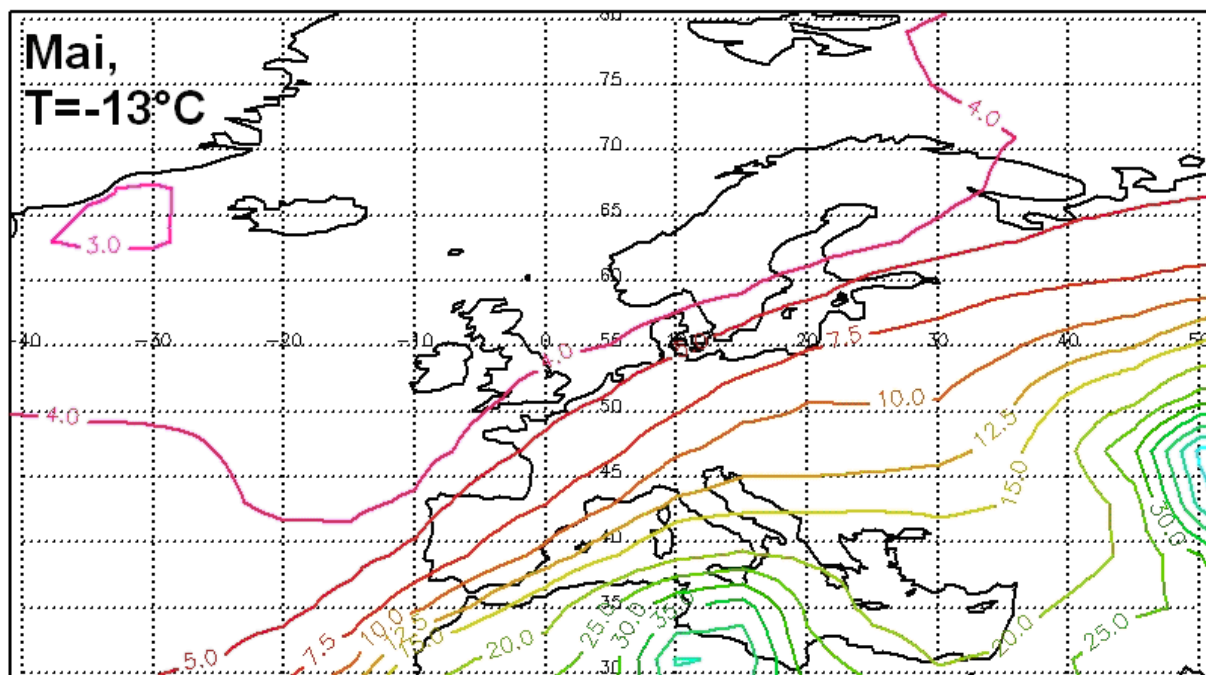


Abbildung 2.55 (fortgesetzt):

*Abschätzung der mittleren Eiskeimverteilung für Europa in einer Höhe von 4.300 m.
für oben – Mai; unten – Juli*

berechnet für die Bedingungen $T_{akt} = -13^{\circ}\text{C}$ Relative Feuchte = 99,5% ,

auf Basis von MISR-clim-likely AOD_{Dust} und Gleichung (2.5), (Tabelle 2.A3)

als Vertikalprofil für Mineralstaub wurde das Profil aus Abb 2.54(a) angenommen.

Den Konturen zugeordnete Zahlen entsprechen der Eiskeimkonzentration [IN/Liter]

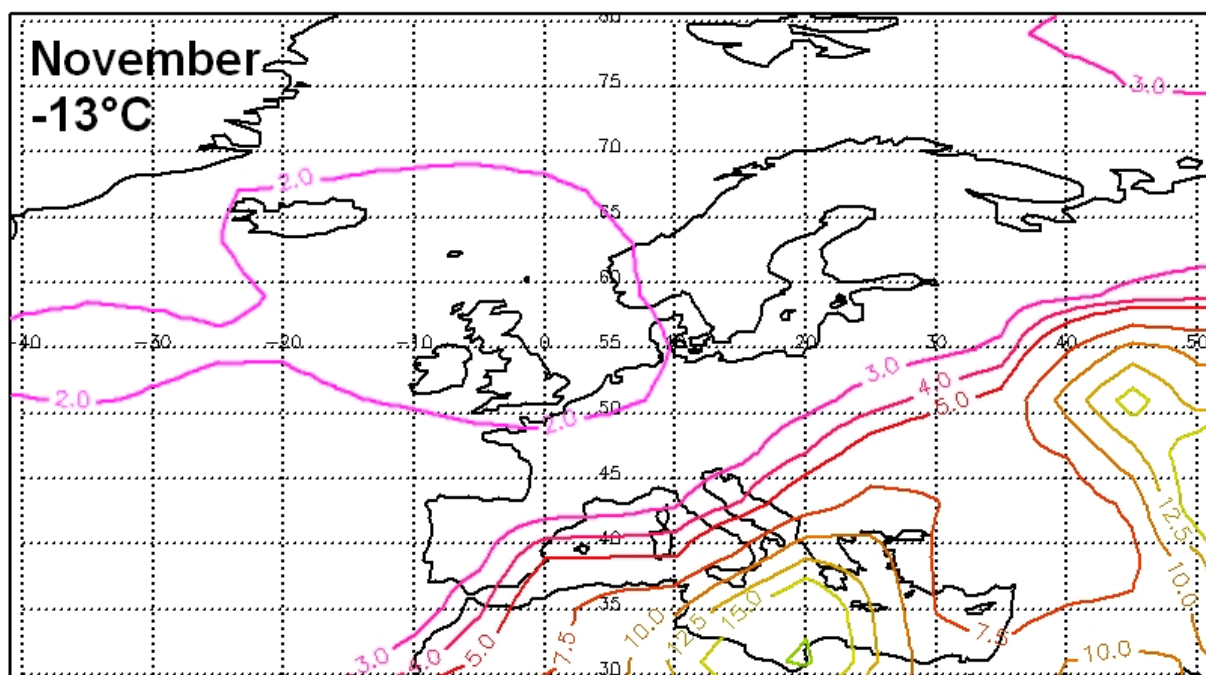
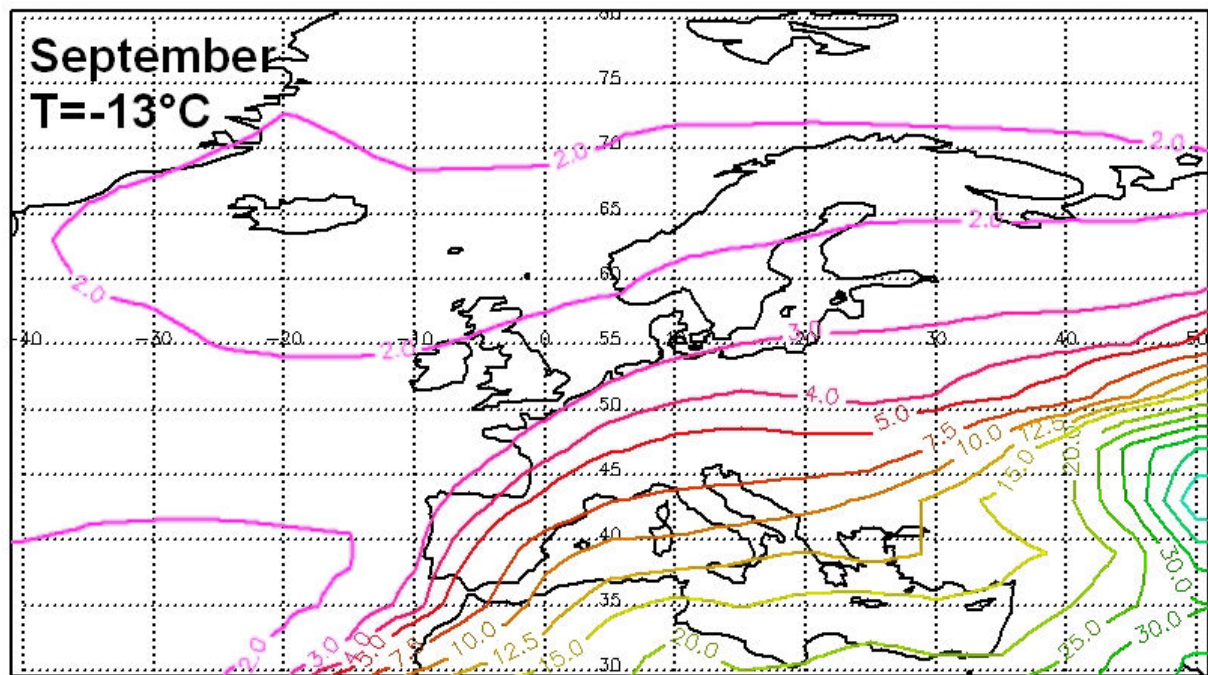


Abbildung 2.55 (fortgesetzt) :

*Abschätzung der mittleren Eiskeimverteilung für Europa in einer Höhe von 4.300 m.
für oben – September; unten – November*

berechnet für die Bedingungen $T_{akt} = -13^{\circ}\text{C}$ Relative Feuchte = 99,5%,

auf Basis von MISR-clim-likely AOD_{Dust} und Gleichung (2.5), (Tabelle 2.A3)

als Vertikalprofil für Mineralstaub wurde das Profil aus Abb 2.54 (a) angenommen.

Den Konturen zugeordnete Zahlen entsprechen der Eiskeimkonzentration [IN/Liter]

Die in Abbildung 2.55 dargestellten abgeschätzten Eiskeim-Konzentrationen zeigen über Deutschland Variationen der Eiskeimkonzentration von 1,5 IN/l im Januar zu 7,5 IN/ Liter im Mai. Auffällig ist, dass in den ersten Wintermonaten die Isolinien über Westeuropa im Mittel entlang der Breitengrade verlaufen, während sie im Mai eine deutliche Südwest-Nordostkomponente aufweisen. Diese Komponente bleibt über Spanien bis zum September erhalten. In Richtung der Quellgebiete sieht man insbesondere in den Monaten Mai – September stark ansteigende Konzentrationen mit bis zu 40 IN/ Liter.

Man muss bei dieser ersten Abschätzung bedenken, dass die absoluten Zahlen darin sehr abhängig von den getroffenen Annahmen, so z.B. stark von der Form des Vertikalprofils für Mineralstaub und des Temperaturprofils abhängen. Direkter Saharastaubtransport kann auch in Höhen von ~ 4,0 -5,0 km ein Konzentrationsmaximum besitzen, wodurch die Eiskeimkonzentrationen in dieser Schicht enorm verstärkt würde.

2.13 Ergebnis & Fazit

Zur Untersuchung der Variabilität der Eiskeimkonzentration in Mitteleuropa wurde 18 Monate täglich die Konzentration der Eiskeime gemessen. Als Messstandort wurde dabei eine Station auf der Bergkuppe im Taunus (Kleiner Feldberg) gewählt, die als Hintergrundstation gilt und von dem direkten Einfluss lokaler anthropogener Aerosolquellen entkoppelt ist.

Ein Großteil der Konzentrationsmaxima in der Messreihe konnte durch Rückwärts-trajektorien-Analysen und Modellbetrachtungen mit dem Transport mineralstaubreicher Luft aus Quellregionen in Afrika erklärt werden. Darüber hinaus weist die Zeitreihe der Eiskeimkonzentration einen markanten nahezu stetigen Jahresgang in den Monatsmittelwerten auf. Die Konzentrationen sind dabei in den Wintermonaten minimal und nehmen im Frühling/Frühsummer maximale Werte an. Die Betrachtung der großräumigen Transportwege und der jahreszeitliche Zyklus der Mineralstaubquellen in den Wüstengebieten der Sahara, führt zu der These, dass Mineralstaub aus den Wüstengebieten im Frühjahr/Frühsummer stärker in die Westwindzone eingemischt wird als in den Wintermonaten. Aufgrund der bedeutsamen Eiskeimfähigkeit des Wüstenstaubs kann so der Jahresgang der Eiskeimkonzentration in Mitteleuropa beeinflusst werden. Ein möglicher Einfluss regionaler Einflüsse auf die Messwerte wurde anhand von Konzentrationswindrosen, der Bodenfeuchte und weiteren meteorologischen Parametern untersucht, es konnte jedoch kein Anhaltspunkt für einen markanten regionalen Einfluss gefunden werden. Zur Behandlung der Frage in wie weit die ausgewählte Station am Kleinen Feldberg in der Hinsicht auf Mineralstaubtransport repräsentativ für Mitteleuropa ist, wurden langjährige Datenreihen von zehn Stationen des Sonnenphotometer-Netzwerk AERONET untersucht, mit dem Ergebnis dass der Messstandort geeignet für die Untersuchung der Variabilität in Mitteleuropa ist. Als Kernpunkt der Studie wurde untersucht, ob es belastbare empirische Beziehungen der Eiskeimkonzentration gibt zu Parametern die routineartig gemessen oder vorhergesagt werden können. Es zeigte sich, dass die Aerosol-Optische-Dicke (AOD_{Dust}) für groben Mineralstaub ein geeigneter Indikator für die gemessene Variation der Eiskeimkonzentrationen ist.

Es wurde eine Korrelation der Eiskeime zu der Partikelfraktion im Größenbereich von 2,0 bis 3,6 μm Durchmesser festgestellt. Wetterlagenklassen und Rückwärtstrajektorien für den Messzeitraum zeigen eine Abhängigkeit der Eiskeimkonzentration von der Herkunftsregion des Aerosols im Ferntransport.

Die ermittelten Beziehungen zwischen lokaler Eiskeimkonzentration auf der einen Seite und dem Vorkommen von Mineralstaubaerosol, den Partikelgrößenklassen und dem jeweiligen Luftmassenursprung auf der anderen Seite bieten so wesentliche, quantitative Grundlagen einer Prognose der Eiskeimkonzentration.

Als ersten Schritt in die Richtung des Ziels einer Prognose, stellt die Arbeit eine grobe Abschätzung der mittleren monatlichen Eiskeimkonzentration über Europa in 4.3 km Höhe vor.

Der ausgeprägte Jahresgang der Eiskeimkonzentration zeigt über den Zeitraum von 2 Jahren signifikante Ähnlichkeiten zum Verlauf der Atlantik Multidekaden Oszillation (AMO). Falls ein ursächlicher Zusammenhang bestätigt werden kann, wäre dies zusätzlich eine wichtige Information für Klimamodelle. So wird ein Anstieg der AMO im Zusammenhang mit der globalen Erwärmung diskutiert. Die Eiskeimkonzentration selber kann wiederum bei der Wolkenbildung einen Einfluss auf das Rückstreuverhalten von Wolken besitzen, und somit auf das Klima einwirken.

Beobachtete Ausprägungen im Wochengang der gemessenen Eiskeimkonzentrationen weisen auf weitere Zyklen innerhalb der Zeitreihe hin. Diese könnten für einen zusätzlich überlagerten anthropogenen Einfluss auf die Eiskeimkonzentration sprechen. Folgt man der Argumentation von *Bäumer und Vogel* [2007], können Wochengänge in der Aerosol-Optischen Dicke durch Wochengänge anthropogener Emission beeinflusst sein.

Mit dem Einsatz der Indikatoren ist es möglich, über modellierte oder gemessene Parameter die Eiskeimkonzentration und deren Variabilität für spezifische Wetterlagen über Mitteleuropa abzuschätzen, ohne die Notwendigkeit eines aufwendigen flächendeckenden Messnetzes. Es ist darüber hinaus anhand der typischen Jahresgänge der Aerosol-Optischen-Dicke für Mineralstaub an verschiedenen Stationen Europas (siehe Kapitel 2.9 Abbildung 2.41) zu erwarten, dass deutliche saisonale Unterschiede in den Eiskeimkonzentrationen über weiten Teilen Mitteleuropas zu erwarten sind, mit minimalen Werten in den Wintermonaten. Mit dieser Arbeit wurde somit die Variabilität der Eiskeimkonzentration an einer repräsentativen Station in Mitteleuropa untersucht und ein maßgeblicher Einfluss des Ferntransports von Mineralstaub detektiert. Die nachgewiesenen Korrelationen zu Indikatoren sind ein entscheidender Schritt für die Behandlung der primären Eisbildung unter Berücksichtigung der Eiskeimkonzentration in Modellierungen und Vorhersagen für Mitteleuropa.

2.14 Ausblick

Im Folgenden sollen Wege der Weiterführung der vorliegenden Arbeit aufgezeigt werden, die für eine spätere Einarbeitung der Ergebnisse in die Wettervorhersagemodelle notwendig erscheinen.

Zunächst wäre es sinnvoll, die regelmäßigen Probenahmen an weitere Messstationen in Mitteleuropa auszuweiten, um den Einfluss des Mineralstaubes auf die Eiskeimkonzentration großflächig nachzuweisen. Aufgrund des personellen und zeitlichen Aufwands für Probenahme und Analytik war dies im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht möglich.

Geeignet wären Messstandorte mit vorhandener ergänzender Aerosolmesstechnik und z.B. Aeronet Stationen.

Ergänzend zu den Stationsmessungen wären weitere Messungen von Probenahmen aus einem Flugzeug sinnvoll, um Vertikalprofile der Eiskeimkonzentration zu vergleichen mit modellierten Vertikalprofilen von Mineralstaub wie sie z.B. von dem Staubprognosemodell DREAM berechnet werden

Neben der räumlichen Ausweitung der Messungen, wäre es zielführend die zeitliche Probennahmefrequenz von einer täglichen Probe, die eine Stichprobe darstellt zu mehreren Proben täglich zu erweitern, die in regelmäßigen zeitlichen Abständen belegt werden. Hierfür wäre die Entwicklung einer automatisierten Probenahme mit Probenwechsler hilfreich. Der Vorteil hiervon wäre ein repräsentativerer Tagesmittelwert, sowie das der Tagesgang der Eiskeimkonzentration genauer untersucht werden könnte. .

Wichtig ist die bereits begonnene Kooperation mit der Mineralogie der TU-Darmstadt zur nachträglichen Identifikation von Eiskeimen auf den Probenträgern mit Hilfe des Environmental Scanning Electron Microscope, um so statistisch einen mikrophysikalischen Nachweis zur Rolle des Mineralstaubs als Eiskeim der analysierten Proben zu bekommen.

Dies ist auch notwendig, um die Fragestellung zu klären, ob und in welchen Situationen primäres biologisches Aerosol einen zu berücksichtigenden Beitrag auf die Eiskeimkonzentration besitzt.

Die oben genannten Punkte betreffen das Messverfahren und die Messtechnik.

Die beobachtete Korrelation zwischen Eiskeimkonzentration und der Atlantik-Multidekaden-Oszillation muss einerseits von Seite der Messungen weiterhin verfolgt werden, darüber hinaus ist die Fragestellung zu lösen, ob ein kausaler Zusammenhang besteht.

Für das Ziel einer genauen Eiskeimvorhersage sind weitere Schritte notwendig, welche die Indikatoren für die IN-Konzentration betreffen. Hierzu gehört eine detailliertere Behandlung der Rückwärtstrajektorien, mit der Berechnung der Trajektorien zu den exakten Probenahmeterminen für die gesamte Zeitreihe und dem Einsatz von Trajektorienensembles.

Für den Indikator der Partikelkonzentration im Bereich (1,2 -2,6 μm), der aus dem parallel zur Probenahme gemessenen Größenspektrum ermittelt wurde, wäre ein Vergleich von Eiskeimkonzentrationen zu Modelldaten des Mineralstaubs (z.B. von DREAM) genau dieser Größenfraktion hilfreich

In Bezug auf die Aerosol-Optische-Dicke als Indikator könnte man Mineralstaub-Vertikalprofile, wie sie von Modellen zu Verfügung gestellt werden mit einbeziehen, um die vertikale Verteilung des Aerosols in Bezug auf den Messort zu berücksichtigen.

In dieser Arbeit nicht berücksichtigt wurden Daten vom Aerosol-Lidar Netzwerk EARLINET, da in der Umgebung der Messstation keine entsprechenden Instrumente eingesetzt wurden.

Können so die Beziehungen der Eiskeimkonzentration zu den Indikatoren gefestigt werden, ist im nächsten Schritt anhand einer Multikorrelation die Erstellung einer Gleichung für die Eiskeimkonzentration für prognostisch verfügbare Daten denkbar.

Dann wäre durch die Ankopplung an Vorhersagenmodelle für Trajektorien, Wetterlagenklassenvorhersagen und vor allen an Ausbreitungsmodelle für Mineralstaub eine detaillierte Prognose der Eiskeimkonzentration in Mitteleuropa realisierbar.

Daraufhin wären Probeläufe der Vorhersagemodelle notwendig, um zu klären welche Auswirkungen sich auf die Wettermodellierung und -prognose ergeben mit der anschließenden Prüfung, ob die detaillierte Berücksichtigung der Eiskeimkonzentration eine Verbesserung der Niederschlags-Vorhersage bringt.

2.15 Anhang

Tabelle 2.A1: Großwetterlagen nach Hess [*Gerstengarbe, 1999*]

| | |
|---|---|
| A) Großwetterlagen der zonalen Zirkulationsform | |
| WA | Westlage, antizyklonal |
| WZ | Westlage, zyklonal |
| WS | Südliche Westlage |
| WW | Winkelförmige Westlage |
| B) Großwetterlagen der gemischten Zirkulationsform | |
| SWA | Südwestlage, antizyklonal |
| SWZ | Südwestlage, zyklonal |
| NWA | Nordwestlage, antizyklonal |
| NWZ | Nordwestlage, zyklonal |
| HM | Hoch Mitteleuropa |
| BM | Hochdruckbrücke (Rücken) Mitteleuropa |
| TM | Tief Mitteleuropa |
| C) Großwetterlagen der meridionalen Zirkulationsform | |
| NA | Nordlage, antizyklonal |
| NZ | Nordlage, zyklonal |
| HNA | Hoch Nordmeer-Inland, antizyklonal |
| HNZ | Hoch Nordmeer-Inland, zyklonal |
| HB | Hoch Britische Inseln |
| TRM | Trog Mitteleuropa |
| NEA | Nordostlage, antizyklonal |
| NEZ | Nordostlage, zyklonal |
| HFA | Hoch Fennoskandien, antizyklonal |
| HFZ | Hoch Fennoskandien, zyklonal |
| HNFA | Hoch Nordmeer-Fennoskandien, antizyklonal |
| HNFZ | Hoch Nordmeer-Fennoskandien, zyklonal |
| SEA | Südostlage, antizyklonal |
| SEZ | Südostlage, zyklonal |
| SA | Südlage, antizyklonal |
| SZ | Südlage, zyklonal |
| TB | Tief Britische Inseln |
| TRW | Trog Westeuropa |
| U | Übergang |

In den folgenden Tabellen sind die Ergebnisse der Regressionsanalysen für den gesamten Zeitraum der Eiskeimzeitreihe (April 2008 – Mai 2010) aufgeführt.

Für die Korrelation mit den langjährigen Daten von **AERONET-Mainz** (Abbildung 2.21) gilt folgende Regressionsgleichung:

$$IN(T, RH) = b * AOD_{\text{Dust-coarse extinktion } 1020 \text{ nm}} + a \text{ [IN/Liter]} \quad (2.4)$$

mit den Daten für a und b aus Tabelle (2.A2)

Tabelle 2.A2: Korrelationstabelle zwischen Monatsmittelwerten von $AOT_{\text{Dust-Coarse extinktion } 1020 \text{ nm}}$ (Mainz) und Eiskeimkonzentrationen (Monatsmittelwerte(2008-2010))

| Aktivierungstemperatur | RH _{eis} | RH _{wasser} | Steigung b | Achsenabstand a | Korrelationskoeffizient |
|------------------------|-------------------|----------------------|------------|-----------------|-------------------------|
| -8 | 103 | 95.21 | 189.14 | 0.08 | 0.71 |
| -8 | 105 | 97.06 | 239.12 | 1.41 | 0.81 |
| -8 | 107 | 98.91 | 348.47 | 1.51 | 0.84 |
| -13 | 106 | 93.32 | 174.04 | 0.95 | 0.77 |
| -13 | 110 | 96.84 | 346.67 | 0.05 | 0.84 |
| -13 | 113 | 99.48 | 957.27 | -4.40 | 0.86 |
| -18 | 107 | 93.06 | 173.09 | 1.22 | 0.75 |
| -18 | 115 | 96.41 | 375.03 | -0.40 | 0.86 |
| -18 | 119 | 99.76 | 1389.48 | -7.76 | 0.91 |

Für die Korrelation mit **MISR-Clim-likely** Daten (Abbildung 2.21) gilt entsprechend die Regressionsgleichung

$$IN(T, RH) = b * AOD_{\text{Dust-coarse + middlesize}} + a \text{ [IN/Liter]} \quad (2.5)$$

Mit den Daten (a, b) aus Tabelle (2.A3)

Tabelle 2.A3: Korrelationstabelle zwischen Monatsmittelwerten von $AOT_{\text{Dust-Coarse+middlesize}}$ (MISR-Clim-likely) und Eiskeimkonzentrationen (Monatsmittelwerte (2008-2010))

| Aktivierungstemperatur | RH _{eis} | RH _{wasser} | Steigung b | Achsenabstand a | Korrelationskoeffizient |
|------------------------|-------------------|----------------------|------------|-----------------|-------------------------|
| -8 | 103 | 95.21 | 146.58 | 1.63 | 0.79 |
| -8 | 105 | 97.06 | 167.89 | 3.68 | 0.80 |
| -8 | 107 | 98.91 | 243.73 | 4.83 | 0.82 |
| -13 | 106 | 93.32 | 125.33 | 2.55 | 0.77 |
| -13 | 110 | 96.84 | 232.48 | 3.53 | 0.79 |
| -13 | 113 | 99.48 | 717.80 | 3.86 | 0.90 |
| -18 | 107 | 93.06 | 122.06 | 2.85 | 0.74 |
| -18 | 115 | 96.41 | 242.77 | 3.52 | 0.78 |
| -18 | 119 | 99.76 | 924.85 | 6.32 | 0.85 |

Weitere entsprechende Korrelationstabellen für den AOD_{Dust} Datensatz des **Global Aerosol Climatology Project** (nach *Tegen et al.*, [1997]):

Tabelle 2.A4: Korrelationstabellen zwischen Monatsmittelwerten von AOD_{Dust} (**49°N 10°O**) *Global Aerosol Climatology Project* (nach *Tegen et al.*, [1997]) und Eiskeimkonzentrationen am Kleinen Feldberg (Monatsmittelwerte (2008-2010))

(a) Total soil dust aerosol

| Aktivierungstemperatur | RH eis | RH wasser | Steigung b | Achsenabstand a | Korrelationskoeffizient |
|------------------------|-----------|--------------|------------|--------------------|-------------------------|
| -8 | 103 | 95.21 | 143.70 | 1.73 | 0.79 |
| -8 | 105 | 97.06 | 170.57 | 3.69 | 0.83 |
| -8 | 107 | 98.91 | 246.52 | 4.86 | 0.85 |
| -13 | 106 | 93.32 | 121.93 | 2.65 | 0.77 |
| -13 | 110 | 96.84 | 226.73 | 3.71 | 0.79 |
| -13 | 113 | 99.48 | 694.49 | 4.51 | 0.89 |
| -18 | 107 | 93.06 | 119.07 | 2.95 | 0.74 |
| -18 | 115 | 96.41 | 236.08 | 3.72 | 0.77 |
| -18 | 119 | 99.76 | 908.76 | 6.92 | 0.85 |

(b) Fraction of soil dust from disturbed soils

| Aktivierungstemperatur | RH eis | RH wasser | Steigung b | Achsenabstand a | Korrelationskoeffizient |
|------------------------|-----------|--------------|------------|--------------------|-------------------------|
| -8 | 103 | 95.21 | 297.00 | 1.81 | 0.79 |
| -8 | 105 | 97.06 | 349.92 | 3.81 | 0.81 |
| -8 | 107 | 98.91 | 506.60 | 5.03 | 0.83 |
| -13 | 106 | 93.32 | 243.01 | 2.79 | 0.73 |
| -13 | 110 | 96.84 | 451.18 | 3.98 | 0.75 |
| -13 | 113 | 99.48 | 1419.77 | 5.04 | 0.87 |
| -18 | 107 | 93.06 | 235.14 | 3.11 | 0.70 |
| -18 | 115 | 96.41 | 466.46 | 4.03 | 0.73 |
| -18 | 119 | 99.76 | 1857.42 | 7.60 | 0.84 |

(c) Submicron soil dust

| Aktivierungstemperatur | RH eis | RH wasser | Steigung b | Achsenabstand a | Korrelationskoeffizient |
|------------------------|-----------|--------------|------------|--------------------|-------------------------|
| -8 | 103 | 95.21 | 192.58 | 1.58 | 0.80 |
| -8 | 105 | 97.06 | 223.12 | 3.59 | 0.82 |
| -8 | 107 | 98.91 | 322.26 | 4.73 | 0.84 |
| -13 | 106 | 93.32 | 162.58 | 2.54 | 0.77 |
| -13 | 110 | 96.84 | 299.77 | 3.54 | 0.79 |
| -13 | 113 | 99.48 | 917.99 | 3.98 | 0.89 |
| -18 | 107 | 93.06 | 158.37 | 2.84 | 0.74 |
| -18 | 115 | 96.41 | 310.91 | 3.56 | 0.77 |
| -18 | 119 | 99.76 | 1197.10 | 6.28 | 0.85 |

(d) Fraction of submicron soil dust from disturbed soils

| Aktivierungstemperatur | RH eis | RH wasser | Steigung b | Achsenabstand a | Korrelationskoeffizient |
|------------------------|-----------|--------------|------------|--------------------|-------------------------|
| -8 | 103 | 95.21 | 399.27 | 1.67 | 0.80 |
| -8 | 105 | 97.06 | 458.46 | 3.72 | 0.80 |
| -8 | 107 | 98.91 | 663.53 | 4.90 | 0.82 |
| -13 | 106 | 93.32 | 324.73 | 2.69 | 0.74 |
| -13 | 110 | 96.84 | 597.55 | 3.82 | 0.75 |
| -13 | 113 | 99.48 | 1882.12 | 4.52 | 0.87 |
| -18 | 107 | 93.06 | 313.75 | 3.01 | 0.70 |
| -18 | 115 | 96.41 | 615.51 | 3.88 | 0.73 |
| -18 | 119 | 99.76 | 2445.69 | 7.04 | 0.83 |

2.16 Literaturverzeichnis

- Afeti, G. M. and F. J. Resch (2000). "Physical characteristics of Saharan dust near the Gulf of Guinea." Atmospheric Environment **34**(8): 1273-1279.
- Alastuey, A., X. Querol, et al. (2005). "Characterisation of TSP and PM_{2.5} at Izana and Sta. Cruz de Tenerife (Canary Islands, Spain) during a Saharan dust episode (July 2002)." Atmospheric Environment **39** (26) 4715–4728.
- Alnaimi, R. and C. P. R. Saunders (1985). "Measurements of Natural Deposition and Condensation-Freezing Ice Nuclei with a Continuous-Flow Chamber." Atmospheric Environment **19**(11): 1871-1882.
- Alpert, P., P. Kishcha, et al. (2004). "Vertical distribution of Saharan dust based on 2.5-year model predictions." Atmospheric Research **70**(2): 109-130.
- Alpert, P., S. O. Krichak, et al. (2002). "A dust prediction system with TOMS initialization." Monthly Weather Review **130**(9): 2335-2345.
- Amato, I. (2006). "Sticky bacterium." Chemical & Engineering News **84**(16): 8-8.
- Amato, P., M. Parazols, et al. (2006). First evidence of biodegradation of organic substances in natural clouds from puy de Dôme, HAL - CCSd - CNRS.
- Avila, A., I. QueraltMitjans, et al. (1997). "Mineralogical composition of African dust delivered by red rains over northeastern Spain." Journal of Geophysical Research-Atmospheres **102**(D18): 21977-21996.
- Barkan, J., H. Kutiel, et al. (2004). "Climatology of Dust Sources in North Africa and the Arabian Peninsula, Based on TOMS Data." Indoor and Built Environment, pp. 407-419 vol. 13:.
- Baumer, D. and B. Vogel (2007). "An unexpected pattern of distinct weekly periodicities in climatological variables in Germany." Geophysical Research Letters **34**(3): -.
- Bergeron, T. (1935). "On the Physics of Cloud and Precipitation." Proc. 5th Assembly UGGI, Lisbon **2**: 1-19, 173-178.
- Bertrand, J., J. Baudet, et al. (1973). "Seasonal Variations and Frequency Distributions of Ice Nuclei Concentrations at Abidjan, West Africa." Journal of Applied Meteorology **12**(7): 1191-1195.
- Borys, R. D. (1989). "Studies of ice nucleation by Arctic aerosol on AGASP-II." Journal of Atmospheric Chemistry **9**(1): 169-185.
- Bryson, R. A. and D. A. Baerreis (1967). "Possibilities of Major Climatic Modification and Their Implications - Northwest India a Case for Study." Bulletin of the American Meteorological Society **48**(3): 136-&.

- Bundke, U. (1997). "Optische Eigenschaften atmosphärischer Teilchen: Teilchen im Stadtgebiet von Frankfurt am Main und Vergleich zwischen Frankfurt und dem Kleinen Feldberg (Taunus)." Diplomarbeit im Fachbereich Geowissenschaften Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main.
- Bundke, U., B. Nillius, et al. (2008). "The fast Ice Nucleus chamber FINCH." Atmospheric Research **90**(2-4): 180-186.
- Burch, M. and E. Levetin (2002). "Effects of meteorological conditions on spore plumes." International Journal of Biometeorology **46**(3): 107-117.
- Burrows, S. M., T. Butler, et al. (2009). "Bacteria in the global atmosphere - Part 2: Modeling of emissions and transport between different ecosystems." Atmospheric Chemistry and Physics **9**(23): 9281-9297.
- Castro, A., J. L. Marcos, et al. (1998). "Concentration of ice nuclei in continental and maritime air masses in Leon (Spain)." Atmospheric Research **48**: 155-167.
- Chen, Y. L., S. M. Kreidenweis, et al. (1998). "Single particle analyses of ice nucleating aerosols in the upper troposphere and lower stratosphere." Geophysical Research Letters **25**(9): 1391-1394.
- Chiapello, I., C. Moulin, et al. (2005). "Understanding the long-term variability of African dust transport across the Atlantic as recorded in both Barbados surface concentrations and large-scale Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) optical thickness." Journal of Geophysical Research-Atmospheres **110**(D18): -.
- Cooper, W. A. (1980). "A method of detecting contact ice nuclei using filter samples." Eighth Int. Conf. Cloud Phys., Clermont-Ferrand, France: 665-668.
- Cooper, W. A. (1986). "Ice initiation in natural clouds. Precipitation Enhancement-A Scientific Challenge." Meteor. Monogr. Amer. Meteor. Soc. **43**: 29-32.
- Curtius, J. B., H. (2008). Wie in Wolken der Regen entsteht. Forschung Frankfurt, Goethe Universität Frankfurt am Main. **03/2008**: 29-33.
- D'Almeida, G. A. (1986). "A Model for Saharan Dust Transport." Journal of Climate and Applied Meteorology **25**(7): 903-916.
- D'Almeida, G. A. (1987). "Desert aerosol characteristics and effects on climate." Paleoclimatology and palaeometeorology: modern and past patterns of global atmospheric transport NATO ASI Series C **282**: 311-338.
- DeMott, P. J., A. J. Prenni, et al. (2010). "Predicting global atmospheric ice nuclei distributions and their impacts on climate." Proceedings of the National Academy of Sciences **107**(25): 11217-11222.
- DeMott, P. J., K. Sassen, et al. (2003). "African dust aerosols as atmospheric ice nuclei." Geophysical Research Letters **30**(14): -.

- DeMott, P. J. P., A.J. Kreidenweis, S.M. Twohy, C.H. und D.C. Rogers (2006). Ice Nuclei Variability and Ice Formation in Mixed-Phase Clouds Sixteenth ARM Science Team Meeting Proceedings Albuquerque, NM.
- Demuzere, M. W., M. (2006). "Jenkinson-Collison classifications as a method for analyzing GCM-scenario pressure fields, with respect to past and future climate change and European simulated mineral dust deposition." Max Planck Institute for Biogeochemistry [Jena] - Report: 1-12.
- Dijkstra, H., L. te Raa, et al. (2006). "On the physics of the Atlantic Multidecadal Oscillation." Ocean Dynamics **56**(1): 36-50.
- Draxler, R. R., Hess, G.D. (1998). "An overview of the HYSPLIT_4 modelling system for trajectories, dispersion and deposition." Australian meteorological magazine **47**(4): 295-308.
- Drees, L. R., A. Manu, et al. (1993). "Characteristics of aeolian dusts in Niger, West Africa." Geoderma **59**(1-4): 213-233.
- Duncan Fairlie, T., D. J. Jacob, et al. (2007). "The impact of transpacific transport of mineral dust in the United States." Atmospheric Environment **41**(6): 1251-1266.
- Dusek, U., G. P. Frank, et al. (2006). "Size matters more than chemistry for cloud-nucleating ability of aerosol particles." Science **312**(5778): 1375-1378.
- Ebert, M., S. Weinbruch, et al. (2004) "The chemical characterization and complex refractive index of rural and urban influenced aerosols determined by individual particle analysis." Atmospheric Environment **38**, 6531-6545
- Enfield, D. B. and A. M. Mestas-Nunez (1999). "Multiscale variabilities in global sea surface temperatures and their relationships with tropospheric climate patterns." Journal of Climate **12**(9): 2719-2733.
- Enfield, D. B., A. M. Mestas-Nunez, et al. (2001). "The Atlantic multidecadal oscillation and its relation to rainfall and river flows in the continental US." Geophysical Research Letters **28**(10): 2077-2080.
- Engelstaedter, S., I. Tegen, et al. (2006). "North African dust emissions and transport." Earth-Science Reviews **79**(1-2): 73-100.
- F.-W. Gerstengarbe, P. C. W., U. Rüge (Mitarb.) (1999). "Katalog der Großwetterlagen Europas (1881 - 1998). Nach Paul Hess und Helmuth Brezowsky " Potsdam/Offenbach a. M.(5 Auflage).
- Field, P. R., O. Mohler, et al. (2006). "Some ice nucleation characteristics of Asian and Saharan desert dust." Atmospheric Chemistry and Physics **6**: 2991-3006.
- Flentje, H., M. Fricke, et al. (2008). "Wochengang im Aerosol am Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg " GAW-Brief des DWD, **Nr.45 Oktober**: 2.

- Fletcher, N. H. (1962). "Surface Structure of Water and Ice." Philosophical Magazine **7**(74): 255-&.
- Fletcher, N. H. (1969). "Active Sites and Ice Crystal Nucleation." Journal of the Atmospheric Sciences **26**(6): 1266-&.
- Formenti, P., J. L. Rajot, et al. (2011) "Airborne observations of mineral dust over Western Africa in the summer monsoon season: spatial and vertical variability of physico-chemical and optical properties" Atmos. Chem. Phys. Discuss., **11**, 2549-2609, doi:10.5194/acpd-11-2549-2011,
- Franzen, L. G., J. O. Mattson, et al. (1994). "Yellow Snow over the Alps and Sub-Arctic from Dust Storm in Africa, March 1991." Ambio **23**(3): 233-235.
- Friedrich, R. R., S. (2004). "Emissions of Air Pollutants - Measurement, Calculation, Uncertainties - Results from the EUROTRAC Subproject GENEMIS " Hrsg. Springer Publishers **ISBN 3-540-008403**.
- Grousset, F. E., P. Ginoux, et al. (2003). "Case study of a Chinese dust plume reaching the French Alps." Geophysical Research Letters **30**(6): -.
- Grousset, F. E., P. Rognon, et al. (1992). "Origins of peri-Saharan dust deposits traced by their Nd and Sr isotopic composition." Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology **93**(3-4): 203-212.
- Guerzoni, S., E. Molinaroli, et al. (1997). "Saharan dust inputs to the western Mediterranean Sea: depositional patterns, geochemistry and sedimentological implications." Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography **44**(3-4): 631-654.
- Heintzenberg, J., K. Okada, et al. (1996). "On the composition of non-volatile material in upper tropospheric aerosols and cirrus crystals." Atmospheric Research **41**(1): 81-88.
- Hoose, C. and et al. (2010). "How important is biological ice nucleation in clouds on a global scale?" Environmental Research Letters **5**(2): 024009.
- Huang, J. F., C. D. Zhang, et al. (2010). "African dust outbreaks: A satellite perspective of temporal and spatial variability over the tropical Atlantic Ocean." Journal of Geophysical Research-Atmospheres **115**: -.
- Jacobson, M. Z. and D. G. Streets (2009). "Influence of future anthropogenic emissions on climate, natural emissions, and air quality." J. Geophys. Res. **114**(D8): D08118.
- Jenkinson, A. F. a. C., F. P. (1977). "An initial climatology of gales over the North Sea, ." Synoptic Climatology Branch Memorandum Meteorological Office, Bracknell, **No. 62**.
- Kamphus, M., M. Ettner-Mahl, et al. (2009). "Chemical composition of ambient aerosol, ice residues and cloud droplet residues in mixed-phase clouds: single particle analysis during the Cloud and Aerosol Characterization Experiment (CLACE 6)." Atmos. Chem. Phys. Discuss. **9**(4): 15375-15421.

- Kaufman, Y. J., I. Koren, et al. (2005). "Dust transport and deposition observed from the Terra-Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) spacecraft over the Atlantic Ocean." J. Geophys. Res. **110**(D10): D10S12.
- Kinne, S., M. Schulz, et al. (2006). "An AeroCom initial assessment - optical properties in aerosol component modules of global models." Atmospheric Chemistry and Physics **6**: 1815-1834.
- Kitagawa—Kitade, T. M., H. (1979). "Long-term Observations of Ice Nucleus Concentration in Tokyo." Papers in Meteorology and Geophysics **30**(3/4): 133-139.
- Klein, H., W. Haunold, et al. (2009). "A new method for sampling of atmospheric ice nuclei with subsequent analysis in a static diffusion chamber." Atmospheric Research **96**(2-3): 218-224.
- Klein, H., S. Nickovic, et al. (2010). "Saharan dust and ice nuclei over Central Europe." Atmos. Chem. Phys. Discuss. **10**(6): 14993-15022.
- Knight, J. R., R. J. Allan, et al. (2005). "A signature of persistent natural thermohaline circulation cycles in observed climate." Geophys. Res. Lett. **32**(20): L20708.
- Komppula, M., H. Lihavainen, et al. (2005). "Measurements of cloud droplet activation of aerosol particles at a clean subarctic background site." Journal of Geophysical Research-Atmospheres **110**(D6): -.
- Kutiel, H. and Y. Benaroch (2002). "North Sea-Caspian Pattern (NCP) - an upper level atmospheric teleconnection affecting the Eastern Mediterranean: Identification and definition." Theoretical and Applied Climatology **71**(1-2): 17-28.
- Lejenas, H. and H. Okland (1983). "Characteristics of Northern Hemisphere Blocking as Determined from a Long-Time Series of Observational Data." Tellus Series a-Dynamic Meteorology and Oceanography **35**(5): 350-362.
- Lenoble, J., C. Brogniez, et al. (2008). "Measurements of UV Aerosol Optical Depth in the French Southern Alps." Atmos. Chem. Phys. Discuss. **8**(1): 161-179.
- Littmann, T. (1991). "Dust storm frequency in Asia: Climatic control and variability." International Journal of Climatology **11**(4): 393-412.
- Lyamani, H., F. J. Olmo, et al. (2005). "Saharan dust outbreak over southeastern Spain as detected by sun photometer." Atmospheric Environment **39**(38): 7276-7284.
- Maki, L. R., E. L. Galyan, et al. (1974). "Ice Nucleation Induced by Pseudomonas-Syringae." Applied Microbiology **28**(3): 456-459.
- Maley, J. (1982). "Dust, Clouds, Rain Types, and Climatic Variations in Tropical North-Africa." Quaternary Research **18**(1): 1-16.
- Mason, B. J. (1971). "The physics of clouds." Clarendon Press, Oxford: 207-211.

- Mason, B. J. and J. Maybank (1958). "Ice-Nucleating Properties of Some Natural Mineral Dusts." Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society **84**(361): 235-241.
- Mattsson, J. O. and T. Nihlen (1996). "The transport of Saharan dust to southern Europe: A scenario." Journal of Arid Environments **32**(2): 111-119.
- Meyers, M. P., P. J. Demott, et al. (1992). "New Primary Ice-Nucleation Parameterizations in an Explicit Cloud Model." Journal of Applied Meteorology **31**(7): 708-721.
- Middleton, N. J. (1986). "Dust Storms in the Middle-East." Journal of Arid Environments **10**(2): 83-96.
- Middleton, N. J. and A. S. Goudie (2001). "Saharan dust: sources and trajectories." Transactions of the Institute of British Geographers **26**(2): 165-181.
- Min, Q. L., R. Li, et al. (2009). "Evidence of mineral dust altering cloud microphysics and precipitation." Atmospheric Chemistry and Physics **9**(9): 3223-3231.
- Möhler, O., P. R. Field, et al. (2006). "Efficiency of the deposition mode ice nucleation on mineral dust particles." Atmospheric Chemistry and Physics **6**: 3007-3021.
- Molinaroli, E. (1996). "Mineralogical characteristics of Saharan dust with a view to its final destination in Mediterranean sediments." In: The Impact of Desert Dust Across the Mediterranean (Guerzoni, S. and Chester, R., Eds.) **Dordrecht Kluwer Academic Publisher**: 153-162.
- Morales, C. (1986). "The Airborne Transport of Saharan Dust - a Review." Climatic Change **9**(1-2): 219-241.
- Morris, C. E., D. G. Georgakopoulos, et al. (2004). "Ice nucleation active bacteria and their potential role in precipitation." Journal De Physique Iv **121**: 87-103.
- Müller, W. (1969). "Über den Einfluß meteorologischer Bedingungen auf die Gefrierkerndichte der Luft." Meteorology and Atmospheric Physics **18**(1): 55-74.
- NASA (2008). "Climatic Zones, <http://sealevel.jpl.nasa.gov/overview/climate-climatic.html>." Jet Propulsion Laboratory/California Institut of Technology.
- Nickovic, S., G. Kallos, et al. (2001). "A model for prediction of desert dust cycle in the atmosphere." Journal of Geophysical Research-Atmospheres **106**(D16): 18113-18129.
- Nillius, B. (2008). Entwicklung, Aufbau und Messungen eines schnellen Eiskeimzählers. Dissertation, Mainz, Johannes Gutenberg-Universität, Institut für Physik der Atmosphäre.
- Pearce, F. (2008). "Fewer Atlantic hurricanes, but look out for the big ones." New Scientist **198**(2657): 9-9.
- Perry, K. D., T. A. Cahill, et al. (1997). "Long-range transport of North African dust to the eastern United States." Journal of Geophysical Research-Atmospheres **102**(D10): 11225-11238.

- Pratt, K. A., P. J. DeMott, et al. (2009). "In situ detection of biological particles in cloud ice-crystals." Nature Geoscience **2**(6): 397-400.
- Pruppacher, H. R. K., J.D. (1997). Microphysics of clouds and precipitation. Dodrecht, Kluwer Academic Publishers.
- Quass, U. J., A. Kuhlbusch, T. (2008). "Quellenzuordnung für Feinstaub in Hessen: Frankfurt/Main und Kleiner Feldberg (Bericht)." Institut für Energie- und Umwelttechnik e. V. (IUTA) / Auftraggeber: Hessisches Ministerium für Umwelt, ländlichen Raum und Verbraucherschutz Bericht-Nr. LP 41/2007.
- Raa, L. T., J. Gerrits, et al. (2004). "Identification of the mechanism of interdecadal variability in the North Atlantic Ocean." Journal of Physical Oceanography **34**(12): 2792-2807.
- Reiff, J., G. S. Forbes, et al. (1986). "African Dust Reaching Northwestern Europe - a Case-Study to Verify Trajectory Calculations." Journal of Climate and Applied Meteorology **25**(11): 1543-1567.
- Richardson, M. S., P. J. DeMott, et al. (2007). "Measurements of heterogeneous ice nuclei in the western United States in springtime and their relation to aerosol characteristics." J. Geophys. Res. **112**(D2): D02209.
- Rogers, D. C. (1988). "Development of a continuous flow thermal gradient diffusion chamber for ice nucleation studies." Atmospheric Research **22**(2): 149-181.
- Rogora, M., R. Mosello, et al. (2004). "Long-term trends in the chemistry of atmospheric deposition in Northwestern Italy: the role of increasing Saharan dust deposition." Tellus B **56**(5): 426-434.
- Sala, J. Q., J. O. Cantos, et al. (1996). "Red dust rain within the Spanish Mediterranean area." Climatic Change **32**(2): 215-228.
- Sassen, K., P. J. DeMott, et al. (2003). "Saharan dust storms and indirect aerosol effects on clouds: CRYSTAL-FACE results." Geophysical Research Letters **30**(12): -.
- Saunders, R. W., O. Mohler, et al. (2010). "An aerosol chamber investigation of the heterogeneous ice nucleating potential of refractory nanoparticles." Atmospheric Chemistry and Physics **10**(3): 1227-1247.
- Schaller, R. C. and N. Fukuta (1979). "Ice Nucleation by Aerosol-Particles - Experimental Studies Using a Wedge-Shaped Ice Thermal-Diffusion Chamber." Journal of the Atmospheric Sciences **36**(9): 1788-1802.
- Schmidt, M. (1975). "Periodicities in freezing nuclei concentrations from 16 years of continuous records." Meteorology and Atmospheric Physics **24**(3): 281-294.
- Schnell, R. C. and G. Vali (1972). "Atmospheric Ice Nuclei from Decomposing Vegetation." Nature **236**(5343): 163-&.

- Schütz, L. (1980). "Long-range transport of desert dust with special emphasis on the Sahara." Annals of the New York Academy of Science **338**: 515-532.
- Schütz, L. J., R. und Pietrek, H. (1981). "Saharan dust transport over the North Atlantic Ocean." Desert dust Geological Society of America Special Paper **186**: 87-100.
- Stein, D., (1984). Untersuchung über die Aktivität atmosphärischer Gefrierkerne in Abhängigkeit von Feuchte und Temperatur, PhD dissertation, Goethe-University, Frankfurt, Germany, 196 pp.
- Swap, R., S. Ulanski, et al. (1996). "Temporal and spatial characteristics of Saharan dust outbreaks." Journal of Geophysical Research-Atmospheres **101**(D2): 4205-4220.
- Targino, A. C., R. Krejci, et al. (2006). "Single particle analysis of ice crystal residuals observed in orographic wave clouds over Scandinavia during INTACC experiment." Atmospheric Chemistry and Physics **6**: 1977-1990.
- Tegen, I., P. Hollrig, et al. (1997). "Contribution of different aerosol species to the global aerosol extinction optical thickness: Estimates from model results." J. Geophys. Res. **102**(D20): 23895-23915.
- Tegen, I. u. S., K (2009). The Global Distribution of Mineral Dust. WMO/GEO Expert Meeting on an International Sand and Dust Storm Warning System, IOP Publishing. **IOP Conf.Series: Earth and Environmental Science** **7**: 6.
- Tomadin, L., R. Lenaz, et al. (1984). "Wind-Blown Dusts over the Central Mediterranean." Oceanologica Acta **7**(1): 13-23.
- Tong, L., Q. S. Lin, et al. (2000). "Extracellular expression, purification, and characterization of a winter flounder antifreeze polypeptide from Escherichia coli." Protein Expression and Purification **18**(2): 175-181.
- Twohy, C. H., B. Gandrud, et al. (1998). Particle Production Near Cirrus Anvil Outflow. in the Upper Troposphere. Paper presented at the Seventeenth Annual Conference, American Association for Aerosol Research.
- Twohy, C. H. and M. R. Poellot (2005). "Chemical characteristics of ice residual nuclei in anvil cirrus clouds: evidence for homogeneous and heterogeneous ice formation." Atmos. Chem. Phys. **5**(8): 2289-2297.
- Uno, I., K. Eguchi, et al. (2009). "Asian dust transported one full circuit around the globe." Nature Geoscience **2**(8): 557-560.
- Vali, G. (2004). "Ice observations in the atmosphere 1949 – 2004." Ice Initiation Workshop.
- Vössing, H. (2001). In-situ Messung großer Hydrometeore mit Hilfe der In-line-Holographie. Dissertation am Fachbereich Physik. Mainz, Johannes Gutenberg-Universität.
- Weinbruch, S., K. Kandler, et al. (2007). "Chemical composition, optical properties and sources of Saharan mineral dust at Izana, Tenerife (Spain)." Geochimica Et Cosmochimica Acta **71**(15): A1099-A1099.

- Wheeler, D. (1985). "Saharan Dust Storm over England." New Scientist **105**(1443): 26-26.
- Wiacek, A. and T. Peter (2009). "On the availability of uncoated mineral dust ice nuclei in cold cloud regions." Geophysical Research Letters **36**: -.
- Yankofsky, S. A., Z. Levin, et al. (1981). "Association with Citrus of Ice-Nucleating Bacteria and Their Possible Role as Causative Agents of Frost Damage." Current Microbiology **5**(4): 213-217.
- Zimmermann, F., M. Ebert, et al. (2007). "Environmental scanning electron microscopy (ESEM) as a new technique to determine the ice nucleation capability of individual atmospheric aerosol particles." Atmospheric Environment **41**(37): 8219-8227.
- Zobrist, B., T. Koop, et al. (2007). "Heterogeneous ice nucleation rate coefficient of water droplets coated by a nonadecanol monolayer." Journal of Physical Chemistry C **111**(5): 2149-2155.

2.17 Verzeichnis externer Datenquellen

Zur Interpretation der Eiskeim-Messungen am Kleinen Feldberg wurde in diesem Kapitel eine Reihe von Datensätzen mehrerer externer Datenbanken verwendet. Verweise dazu befinden sich im Haupttext des Kapitels und bei den entsprechenden Abbildungen.

In diesem Verzeichnis werden die externen Datenquellen mit Kurzerklärung und Angabe der verwendeten Online-Verweise aufgeführt. Für die Verfügbarkeit dieser Daten, ohne die eine Bewertung der vorliegenden Messergebnisse nicht in dieser Weise möglich gewesen wäre, soll an dieser Stelle nochmals gedankt werden.

AOD_{Dust} (Aerosol Optische Dicke in Bezug auf Mineralstaub)

AERONET- Datensätze des Sonnenphotometernetzwerks
(NASA)

(<http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>)

I thank the principal investigators of the sunphotometer-measurements in the AERONET -Framework (PI's) from 13 European locations (1 to 10, A,B,C):

Meinrat Andreae, Stefan Kinne, Albert Ansmann, Brent Holben, Peter Koepke, Luigi Alberotanza, Giuseppe Zibordi, Fridiric Baret, Philippe Goloub, Kevin Ruddick, Philippe Goloub, Olavi Kdrner, Victoria_E._Cachorro_Revilla, Charles L. Wrench, Iain H. Woodhouse,

plus their staff at each location for establishing and maintaining the fourteen measurement - sites used in this investigation.

Multi-angle Imaging SpectroRadiometer (MISR) - Datenbank des
Fernerkundungsinstruments
(NASA)

http://eosweb.larc.nasa.gov/PRODOCS/misr/table_misr.html

These data were provided by the NASA Langley Atmospheric Sciences Data Center. The Atmospheric Sciences Data Center (ASDC) is located at NASA's Langley Research Center and is the primary processing and archive center for MISR data

Global Aerosol Climatology Project – Datenbank des Projekts zur globalen
Klimawirksamkeit des Aerosols)
(NASA)

<http://gacp.giss.nasa.gov/>

The Global Aerosol Climatology Project (GACP) was established in 1998 in response to the recommendations of the 1997 Aerosol Workshop held at the NASA Goddard Institute for Space Studies (GISS) and the resulting call for a focused effort aimed at extracting an improved multi-decadal aerosol record from existing satellite measurements as outlined in the Aerosol Radiative Forcing NRA.

Mineralstaub Transportmodelle

DREAM – *Eulersches regionales Staub Transportmodell*

Dust Regional Atmospheric Model

(Barcelona Supercomputing Center)

(<http://www.bsc.es/projects/earthscience/DREAM/>)

I am thankful for the possibility of using data and/or images from the BSC-DREAM8b (Dust Regional Atmospheric Model) model, operated by the Barcelona Supercomputing Center

NAAPS - *Amerikanische Aerosol-Modellierung der Navy*

Navy Aerosol Analysis and Prediction System

(American Navy)

http://www.nrlmry.navy.mil/aerosol/index_frame.html

The online-available aerosol data are products generated from models under development by researchers at the Marine Meteorology Division of the Naval Research Laboratory

CHIMERE-DUST - *Multiskalen Transport Modell für Staub und weitere Komponenten*

(Laboratoire de Météorologie Dynamique)

<http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/>

A multi-scale model for air quality forecasting and simulation

GO-CART - *Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport*

(NASA)

<http://acdb-ext.gsfc.nasa.gov/People/Chin/gocartinfo.html>

The Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport (GOCART) model simulates major tropospheric aerosol components, including sulfate, dust, black carbon (BC), organic carbon (OC), and sea-salt aerosols.

AEROCOM – *Mineralstaub-Vertikalprofile aus verschiedenen Modellen im Vergleich mit*

LIDAR-Profilen

(Institut Pierre Simon Laplace)

http://nansen.ipsl.jussieu.fr/cgi-bin/AEROCOM/aerocom/lidar_annualrs.pl

Trajektorien-Berechnungen

READY-HYSPLIT – Online Trajektorien berechnet basierend auf unterschiedlichen Wettermodellen
(National Oceanic and Atmospheric Administration)

<http://www.arl.noaa.gov/ready.php>

The authors gratefully acknowledge the NOAA Air Resources Laboratory (ARL) for the provision of the HYSPLIT transport and dispersion model and/or READY website used in this publication.

NILU-Flextra – Online-Trajektorien berechnet mit dem Modell FLEXTRA (Andreas Stohl).
(Norsk institutt for luftforskning)

<http://tarantula.nilu.no/trajectories/>

Air mass trajectories are calculated using the Flextra model developed by Andreas Stohl (NILU) in cooperation with Gerhard Wotawa og Petra Seibert (Institute of Meteorology and Geophysics, Vienna) and using meteorological data provided from ECMWF (European Centre for Medium Range Weather Forecast).

Tägliche Trajektorien (für die Station Kleiner Feldberg)
basierend auf den (GME / COSMO)-Modell des Deutschen Wetterdienstes

We are grateful to Barbara Fay (German weather service - DWD) for the implementation of *trajectory* calculations.

Abgeleitete Parameter der Meteorologie (großskalig)

Telekonnektion Indizes - Datenbank des Zentrums für Klimavorhersage:
(National Oceanic and Atmospheric Administration)

<http://www.ncdc.noaa.gov/oa//climate/research/teleconnect/teleconnect.html>

Data-Sets were taken from the Climate Prediction Center's (CPC)

The Climate Prediction Center's (CPC) products are operational predictions of climate variability, real-time monitoring of climate and the required data bases, and assessments of the origins of major climate anomalies.

Großwetterlagen nach Hess – operationelle Daten
(Deutscher Wetterdienst (DWD))

<http://www.dwd.de>

Datensätze für die lokale/regionale Betrachtung

Global Land Data Assimilation System GLDAS - global Datensatz zur Bodenfeuchte
(NASA)

<http://ldas.gsfc.nasa.gov/gldas/>)

"The data used in this effort were acquired as part of the activities of NASA's Science Mission Directorate, and are archived and distributed by the Goddard Earth Sciences (GES) Data and Information Services Center (DISC)."

Messfeld des DWD am Kleinen Feldberg – Meteorologische Stationsdaten
(DWD)

<http://www.dwd.de/>

Ich danke dem Deutschen Wetterdienst für die Bereitstellung der meteorologischen Daten an der Station Kleiner Feldberg /Taunus

Messnetz des Hessischen Landesamtes für Umwelt und Geologie (HLUG) -
Meteorologische Stationsdaten

<http://www.hlug.de/medien/luft/index.htm>

Ich danke dem Hessischen Landesamt für Umwelt und Geologie für die Bereitstellung der meteorologischen Daten an der Station Kleiner Feldberg / Taunus und benachbarten Stationen

Datensatz für den Blattoberflächen Index (Kapitel zu PBAP)

NEO -- NASA Earth Observations.(MODIS-Satellit) – von Satellitenmessungen
abgeleitete Daten (NASA)

<http://neo.sci.gsfc.nasa.gov/>

NASA Earth Observations. Our mission is to help you picture climate change and environmental changes happening on our home planet. Here you can search for and retrieve satellite images of Earth

2.18 Abkürzungsverzeichnis

| | |
|-------------------------------------|---|
| A, B, C | drei europäische AERONET-Stationen (Abbildung 3.40) |
| A2 | Teilprojekt des SFB 641 (vorliegende Arbeit) |
| A-ATOFMS | Aircraft Aerosol Time of Flight Mass Spectrometer Spezielle Flugzeugversion des Aerosol-Massenspektrometers |
| AEROCOM | Aerosol Comparisons between Observations and Models Projekt zum Vergleich von Aerosolmessungen und Modellierungen |
| AERONET | Aerosol Robotic Network – Sonnenphotometer-Netzwerk unter Schirmherrschaft der NASA |
| AgI | Silberiodid |
| AI | Aerosol Index |
| AIRS 2 | Second Alliance Icing Research Study (Feldmesskampagne) |
| Al | Aluminium |
| Al₂O₃ | Aluminiumoxid |
| AMAZE | AMazonian Aerosol characteriZation Experiment (Feldmesskampagne) |
| AMO | Atlantik Multidekadische Oszillation |
| AMS | Aerosol Massen Spektrometer |
| AOD/AOT/AOT_{Gesamt} | Aerosol Optical Density / Aerosol Optical Thickness |
| AOD_{Dust} | Aerosol Optische Dicke des Mineralstaubs |
| AP | Aerosolpartikel |
| APS | Aerosol Particle Sizer der Firma TSI (Partikelmessgerät zur Aufnahme eines Aerosolgrößenspektrums) |
| APS 3221 | Aerosol Particle Sizer der Firma TSI (Messbereich 0,375 µm – 20 µm) |
| Aqua | Forschungssatellit der NASA Teil des Earth Observing System (EOS) (Erdbeobachtungssystem) |
| ATOFMS | Aerosol Time of Flight Mass Spectrometer Aerosol-Einzelpartikel-Massenspektrometers |
| Ca | Calcium |
| CALIPSO | Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation Satellit mit aktivem LIDAR und passiven Infrarot-Messgeräten |
| CAM-Oslo | Community Atmosphere Model – Allgemeines Zirkulations Modell mit detaillierter Aerosolbehandlung |
| CCN | Cloud Condensation Nuclei - Wolkenkondensationskeime |
| CFDC | Continous Flow Diffusion Chamber Kontinuierlich messendes In-Situ Eiskeim-Messgerät (Rogers, 1988) |
| NaCl | Natriumchlorid |
| CLACE | Cloud and Aerosol Characterisation Experiment (Internationale Messkampagne an der Forschungsstation Jungfrauoch/Schweiz) |

| | |
|------------------------------------|--|
| CN | Condensation Nuclei- Kondensationskeime |
| coarse/fine | grober / feiner Staubanteil (bezogen auf die Partikelgröße) |
| COSMO | Consortium for Small-scale Modeling / Regionalmodelle des DWD COSMO-EU (Europa) und COSMO-DE (Deutschland) |
| CRYSTAL-FACE | The Cirrus Regional Study of Tropical Anvils and Cirrus Layers - Florida Area Cirrus Experiment - Messkampagne mit Bezug auf Zirren |
| Crystal-SAL | The Cirrus Regional Study of Tropical Anvils and Cirrus Layers – Messungen innerhalb der Saharan Air Layer |
| CuO | Kupferoxid |
| d | Partikeldurchmesser |
| DFG | Deutsche Forschungsgemeinschaft |
| DREAM | Dust Regional Atmospheric Model – regionales Modell (Europa/Afrika) für den atmosphärischen Mineralstaubzyklus |
| Dst | Dust ; Mineralstaub |
| DWD | Deutscher Wetterdienst |
| ε | Irrtumswahrscheinlichkeit bei Korrelationsanalysen |
| EAC | Electrostatic Aerosol Collector (Entwicklung im Rahmen dieser Arbeit) |
| EARLINET | European Aerosol Research Lidar NETwork - Verbundnetz der LIDAR - Messstationen |
| EC/BC | Elemental Carbon / Black Carbon Elementarer Kohlenstoff |
| ECHAM | Allgemeines Zirkulationsmodell entwickelt vom Max Planck Institut für Meteorologie (aktuelle Version 5) |
| EDX | Energiedispersive Röntgenspektroskopie - spektroskopische Methode der Materialanalytik |
| ESEM | Environmental Scanning Electron Microscope – (Raster-Elektronenmikroskop das kein Hochvakuum benötigt) |
| ext | Extinktion |
| FACE | Feldberg Aerosol Characterization Experiment Messkampagnen zur Aerosol-Charakterisierung am Kleinen Feldberg/ Taunus |
| Fe₂O₃ | Eisenoxid |
| FINCH | Fast In-Situ Ice-Nuclei Chamber (kontinuierlicher, schneller Eiskeimzähler (Bundke, 2008)) |
| FRIDGE | Frankfurt Ice Deposition Freezing Experiment (Messaufbau des Eiskeimzählers nach dem Verfahren der statischen Vakuum- Diffusions-Kammer) |
| FZK | Forschungszentrum Karlsruhe |
| g | Gravitationsbeschleunigung |
| GACP | Global Aerosol Climatology Project / Projekt zu der Klimawirksamkeit des Aerosols |
| GENEMIS | Emissionsmodell |
| GEOS-5 | The Goddard Earth Observing System Modell –Integrierendes System von Atmosphären Modellen im Bereich der Geowissenschaften |

| | |
|--------------------------------------|---|
| GLDAS | Global Land Data Assimilation System – Daten Assimilationssystem der NASA für die Erdoberfläche, beinhaltet insbesondere den hydrologischen Kreislauf |
| GoCart | Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport Globales Chemie-Transport Modell, welches die Hauptaerosolkomponenten behandelt |
| GrADS | Grid Analysis and Display System, |
| GRAM | Indikatorfärbung die für Bakterien eingesetzt wird |
| HLUG | Hessisches Landesamt für Umwelt und Geologie |
| HYSPLIT | HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory System zur Berechnung von Luftpaket-Trajektorien und Ausbreitungsrechnungen. |
| IAU | Institut für Atmosphäre und Umwelt der Universität Frankfurt am Main (Institute for Atmospheric and Environmental Science) |
| ICAO | International Civil Aviation Organization Internationale Organisation der zivilen Luftfahrt – Herausgeber der ICAO Standardatmosphäre |
| IN | Ice-Nucleus, bzw Ice-Nuclei Eiskeim(e) |
| IN_{Kleiner Feldberg} | Eiskeim Konzentration am Kleinen Feldberg |
| IN/l , IN/Liter | Ice Nuclei per liter Eiskeimkonzentration pro Standardliter Luftvolumen |
| INKleiner Feldberg | Eiskeimkonzentration am Kleinen Feldberg |
| INSPECT | Ice Nuclei. Spectroscopy Study Messkampagne zur Erforschung von Eiskeimen |
| JWGU | Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main |
| KCl | KaliumChlorid |
| KIT | Karlsruhe Institut für Technologie |
| LAI | Leaf-Area Index Blattoberflächenindex |
| lat | Latitude (geographische Breite) |
| LIDAR | Light Detection and Ranging |
| lon | Longitude (geographische Länge) |
| MFC | Mass Flow Controller – Instrument zur Gasflussregulierung |
| Mg | Magnesium |
| MISR | Multiangle Imaging SpectroRadiometer SatellitenSpectrometer/Radiometer am Bord des Terra-Satelitten |
| MISR CLIM- LIKELY | globaler Datensatz eines typischen Jahresgangs verschiedener Aerosol- komponenten. Erstellt von Modellen als Initialprodukt für die MISR Standard Aerosol Retrieval Algorithm climatology |
| MODIS | Moderate-Resolution Imaging Spectroradiometer |
| N | Nord |
| n | Anzahl der Stichprobe |
| Na | Natrium |

| | |
|--|--|
| NAAPS | Navy Aerosol Analysis and Prediction System. Globales Aerosolverhersagemodell und Datenbasis der Navy für Mineralstaub, Sulfataerosol und Rauch |
| NAO | Nord Atlantik Oszillation |
| NASA | National Aeronautics and Space Administration – Nationale Luft- und Raumfahrtbehörde |
| NH | Nordhemisphäre |
| NH | Nordhemisphäre |
| NH₄ | Ammoniumnitrat |
| Nid | Eiskeimkonzentration (IN/I/ |
| NILU | Norwegisches Institut für Luftforschung |
| nm | Nanometer 10 ⁻⁹ meter |
| NO, NE | Nordost |
| NO₂ | Nitrit |
| NO₃ | Nitrat |
| NOAA | National Oceanic and Atmospheric Administration |
| NW | Nordwest |
| O, E | Ost |
| OC | Organic Carbon ; Organischer Kohlenstoff |
| OM | Organic Matter Organischer Massenanteil berechnet aus OC-Anteil |
| PBAP | Primary Biological Aerosol Particles ; Primäre Biologische Aerosolpartikel / Bioaerosol |
| PbI | Bleiiodid |
| PM₁₀ | Particulate Matter <10µm Masse aller Aerosolpartikel mit einem Durchmesser < 10µm |
| Proxy | (engl. : Stellvertreter) hier: Indikator für die Eiskeimkonzentration |
| r | Partikelradius |
| R | Korrelationskoeffizient |
| RH_{Eis}/RH_{ice} | Relative Humidity ice, Relative Feuchte in Bezug auf eine Eisoberfläche |
| RH_{Wasser}, RH | Relative Humidity water, Relative Feuchte in Bezug auf eine Wasseroberfläche |
| S | Süd |
| SAL | Saharan Air Layer (Luftschicht mit Mineralstaub über Nordafrika) |
| Sb₂S₃ | Metastibnite |
| SFB | Sonderforschungsbereich |
| SFB 641 | Sonderforschungsbereich „troposphärische Eisphase“ |

| | |
|---|---|
| SVATS | Surface Vegetation Atmosphere Transfer Schemes (Schema zur Behandlung der Vegetation bei Modellierung der Bodenfeuchte) |
| S_i | Eisübersättigung |
| SO | Südost |
| SO₄ | Sulfat |
| SPLAT | Single Particle Laser Ablation Time-of-Flight Mass Spectrometer Massenspektrometer für Einzelpartikelanalyse auf Basis von Laserablenkung |
| S_w | Feuchte in Bezug auf eine Wasseroberfläche (1=Sättigung) |
| SW | Südwest |
| T | Temperatur [°C] |
| T_{akt}, T_{act} | Aktivierungstemperatur, Temperatur bei dem die Eisbildung bei einem Eiskeim einsetzt. In dieser Arbeit auch jeweilige Temperatur bei der die Eiskeimkonzentrationsmessung durchgeführt wurde |
| TERRA | Forschungssatellit der NASA Teil des Earth Observing System (EOS) (Erdbeobachtungssystem) |
| Tg | Teragramm = 10 ¹² g |
| Ti | Titan |
| TO | Taunus-Observatorium Messstation am Kleinen Feldberg |
| TOMS | Total Ozone Mapping Spectrometer – Satelliten Spektrometer zur Messung von Ozon, Aerosol, Reflektivität, Erythemal UV, Troposphärischem Ozon, vulkanischem SO ₂ Eintrag |
| TSI | Hersteller von Messgeräten auf dem Gebiet der Aerosolmesstechnik |
| TU-D | Technische Universität Darmstadt |
| U,C,A | Undefiniert (Undefined), Zyklonal (Cyclonal), Antizyklonal (Anticyclonal) bei Jenkinson-Collision Wetterlagen |
| UTC | Universal Time Coordinated –Koordinierte Weltzeit |
| v | Sedimentationsgeschwindigkeit |
| W | West |
| WISP | Winter Icing in Storms-Project (Messkampagne) |
| ZnO | Zinkoxid |
| °N,°E,°S,°W | Himmelsrichtungen North, East South, West |
| °N,°O,°S,°W | Himmelsrichtungen Nord Ost Süd West |
| ρ_{aer} | Dichte eines Aerosolpartikels |
| η | Dynamische Zähigkeit der Luft |
| μg, μm | Mikrogramm: 10 ⁻⁶ gramm, Mikrometer 10 ⁻⁶ meter |
| σ | Standardabweichung |

Kapitel 3

The Fast Ice Nucleus Chamber FINCH ATMOSPHERIC RESEARCH (accepted: 4.2.2008)

(Co-Autor, Hauptautor: Ulrich Bundke)

(U. Bundke , B. Nillius, R. Jaenicke, T. Wetter, **H. Klein** und
H. Bingemer)

(publizierte Version)

(published Version)



The fast Ice Nucleus chamber FINCH

U. Bundke^{a,*}, B. Nillius^b, R. Jaenicke^b, T. Wetter^a, H. Klein^a, H. Bingemer^a

^a Institute for Atmosphere and Environment, J.W. Goethe University, Frankfurt, Germany

^b Institute for Atmospheric Physics, J. Gutenberg University, Mainz Germany

ARTICLE INFO

Article history:

Received 15 October 2007

Received in revised form 31 January 2008

Accepted 4 February 2008

Keywords:

Heterogeneous nucleation

Ice Nucleus Counter

ABSTRACT

We present first results of our new developed Ice Nucleus (IN) counter FINCH from the sixth Cloud and Aerosol Characterization Experiment (CLACE 6) campaign at Jungfraujoch station, 3571 m asl. Measurements were made at the total and the ICE CVI inlet. Laboratory measurements of ice onset temperatures by FINCH are compared to those of the static diffusion chamber FRIDGE (FRankfurt Ice Deposition Freezing Experiment). Within the errors of both new instruments the results compare well to published data.

© 2008 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Ice nuclei (IN) initiate the formation of primary ice in tropospheric clouds. It is fairly well understood that in mixed phase clouds precipitation develops by the growth of ice crystals at the expense of the evaporating water drops in what is called the Bergeron–Findeisen process (Findeisen, 1938). However, the role of IN in the development of clouds and precipitation is still poorly understood and needs to be studied (Levin and Cotton, 2007).

The number concentration of IN as well as the temperature and supersaturation required to “activate” IN are considered as key information for the understanding of *primary* ice formation in clouds. However, the concentration of ice particles in a cloud can exceed the actual IN concentration by orders of magnitude due to *ice multiplication* processes. The existence of different modes of nucleation (Condensation-, immersion-, contact-, and deposition-freezing) during both the activation of IN in the atmosphere and in the various different IN detection instruments is a further complication. While off-line methods that collect aerosol on substrates (e.g. filters, impaction plates) and subsequently measure IN by counting the ice crystals that develop upon exposure of the substrate to freezing temperatures and supersaturation may be suitable to study air mass characteristics on a time scale of

hours, in situ-methods are required to study the microphysics of cloud development on the scale of minutes, especially when an airplane is used as a platform. In the past, inter-comparisons (Vali, 1975) had shown large differences of deposition mode freezing IN concentrations measured by various methods. It appears that continuous-flow-device measurements (e.g. Rogers, 1982; Al-Naimi and Saunders, 1985) exhibit roughly a factor of 10 higher concentrations of IN at warmer temperatures than filter processing systems (Levin and Cotton, 2007). Making use of the data by Rogers (1982) and by Al-Naimi and Saunders (1985) Meyers et al. (1992) developed their well-known parameterization of IN concentration as a function of supersaturation.

Measurements with the Continuous Flow Diffusion Chamber (CFDC) of the Colorado State University (Rogers et al., 2001a) meanwhile have provided many IN concentration data for various atmospheric environments (Rogers et al., 1998, 2001b; DeMott et al., 2003a;) as well as of IN chemical composition (DeMott et al., 2003b).

Within the collaborative Research Center 641 TROPICE, funded by the German Research Foundation, two IN counters called FINCH (Fast Ice Nucleus Chamber, a continuous flow mixing chamber) and FRIDGE (FRankfurt Ice Deposition Freezing Experiment, a static vacuum vapour diffusion chamber) were developed and are described briefly below. The first measurements using test aerosol as well as first results from the CLACE 6 Campaign at Jungfraujoch research Station at 3570 m asl are presented.

* Corresponding author.

E-mail address: ulrich.bundke@web.de (U. Bundke).

2. Methods

2.1. FINCH principle of operation

The Fast Ice Nuclei Counter FINCH (Bundke et al., 2006a) was developed jointly by the Institute for Atmosphere and Environment Frankfurt and the Institute for Atmospheric Physics in Mainz (Fig. 1). In FINCH, a 5–10 lpm sample air flow is introduced into the supersaturation zone at the upper end of the annular processing chamber (Fig. 1). Here, supersaturation (with respect to water or ice) is produced by the mixing of particle-free warm, humidified air and cold dry air. Temperature and supersaturation are actively controlled using PID (Proportional Integral Derivative) algorithms with measurements of temperature and frost point as process variables. IN and CCN are activated and grow to macroscopic ice crystals or supercooled water droplets of 5 to 10 μm size as the sample travels along the temperature controlled, annular processing chamber of about 1 m length and 9 cm internal diameter. Large particles are separated from the total sample flow by a virtual impactor (Nozzle diameter 4 mm, Nozzle gap 3.5 mm) and thus concentrated into 10% of the total flow to reduce the flow speed in the optical detector downstream (Nozzle diameter 3 mm, 3 mm diameter of the Laser beam in the detection volume). The design of the virtual impactor ensures a transmission efficiency of 100% for particles larger than 3 μm at total flow rates larger than 50 lpm (see Fig. 2). With our new developed optical detector it is possible to distinguish between supercooled droplets and ice particles to obtain the number concentrations of CCN and IN. FINCH is called a fast IN-counter because of its high sample flow rate of

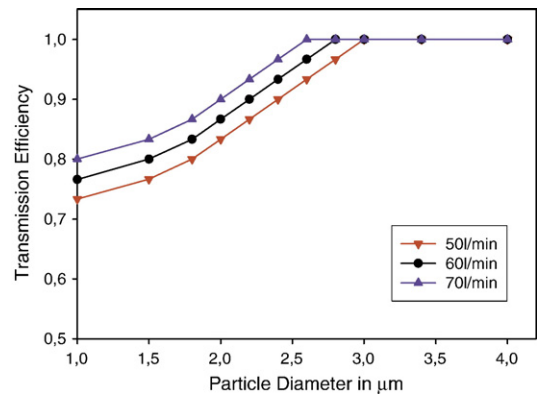


Fig. 2. 2D Model calculations of the virtual impactor transmission efficiency with different flow rates (40, 60, 70 l/min).

5–10 l/min. Considering a number concentration of 10 IN/l, a measuring period of 1 up to 2 min will be sufficient to obtain good statistics.

2.2. Benefits of the mixing principle

In the CFDC type IN counters (Rogers, 1988) supersaturation is controlled by the temperature difference between two annular concentric walls which are ice coated. A laminar sample air flow is introduced into the 1 cm gap in between the walls, and a linear temperature gradient will establish. Water vapour will diffuse from the warmer walls into the flow and towards the cold surface. A supersaturation profile will establish, with a maximum near the center of the gap and saturated conditions near the walls. Particles are introduced and held focused in the small zone (1 mm) of maximum supersaturation.

In general, the mixing principle realized in FINCH has several benefits in comparison to the CFDC style IN counters:

1. No gradients of supersaturation and of temperature are imposed perpendicular to the flow direction, thus it is not necessary to focus the aerosol beam. As a consequence higher sample flowrates up to 10 lpm can be realized. In CFDC type counters a displacement of the particle beam (e.g. by thermophoresis or by misalignment) may result in large errors of the calculated supersaturation and temperature.
2. In FINCH supersaturation and temperature are measured and directly controlled without affecting the particle beam. In CFDC type counters both parameters have to be calculated as function of the flowrate and wall temperatures.
3. Temperature and supersaturation can be changed rapidly by varying the flows of FINCH. In CFDC type counters both temperature and supersaturation can be changed only by changing wall temperatures, which needs some time, because of a large heat capacity of the walls.

2.3. FINCH: fluid mechanic characterization

The three-dimensional distributions of temperature, humidity, and velocity in the chamber were calculated for a variety of different flow rates using FLUENT 3D. The flow rates

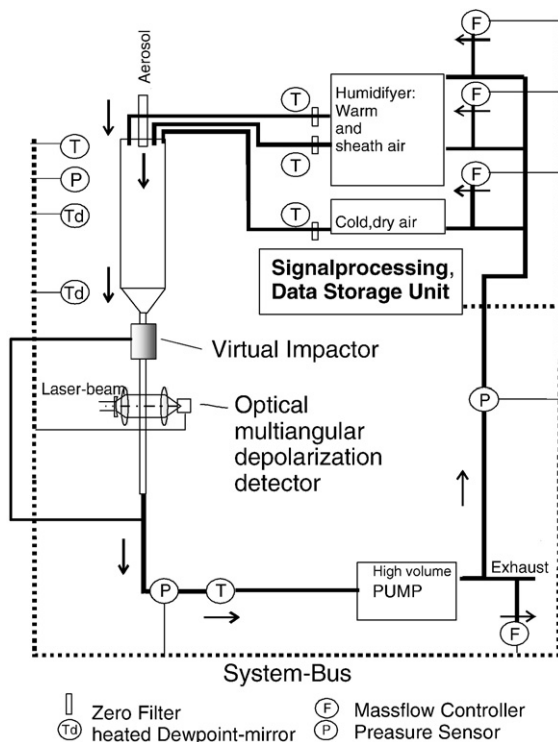


Fig. 1. Schematic flow diagram of the FINCH counter.

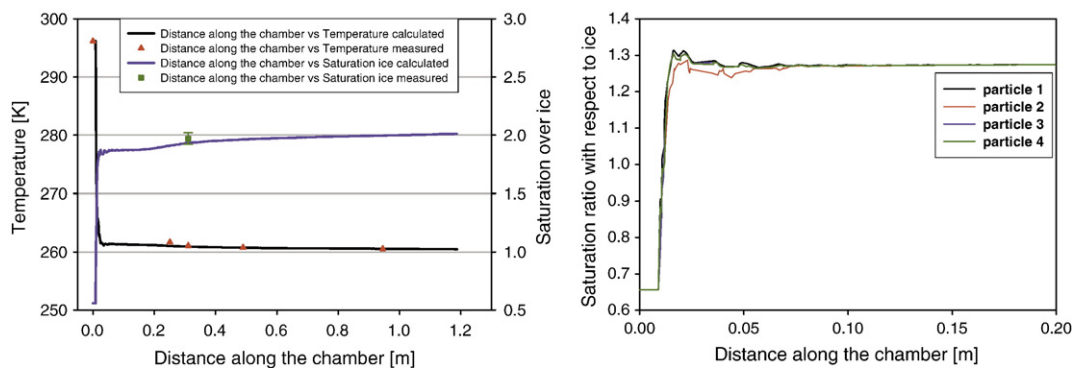


Fig. 3. 3D Model calculations of the FINCH geometry with different flow rates. Calculated temperature and super saturation along particle trajectories were compared with measurements (left). By optimizing the flow rates peak supersaturation seen by individual particles (of $1\mu\text{m}$ diameter and different starting points across the aerosol inlet nozzle) (right) can be avoided.

where optimized with respect to residence time for particle growth and minimization of aerosol losses. For 10 l/min of aerosol flow an optimal residence time of about 4.5 s was found for a combination of 20 l/min of both cold air and sheath air, and 10 l/min of warm air. Higher flow rates of cold and sheath flows up to 50 l/min are possible without changing the basic flow characteristics, but with considerable shorter residence times. Longer residence times are achieved by lowering the flow rates proportionally. But this will result in a poorer count statistics at atmospheric conditions. The results indicate that the instrument is able to measure IN and CCN activation under a wide range of possible supersaturations and temperatures.

These fluid mechanic calculations were compared to measurements made with a newly developed small heated dew point mirror (Bundke et al., 2006b) at a variety of different temperatures and saturation ratios in the chamber. The result shows a very good consistency of measurement and calculation (see Fig. 3a). The dewpoint sensor is now used to actively control the supersaturation during the mixing process.

For optimum flow conditions both temperature and humidity have stabilized and remain constant after a distance

of 10 cm downstream from the inlet and point of mixing (Fig. 3b). Thus it is possible to deduce the peak supersaturation and corresponding temperature from the measurement of temperature and frost point at 10–20 cm without influencing the particle beam. In order to avoid the occurrence of high undiscovered supersaturations (Fig. 3b) measurements with a second sensor were done at 3 cm distance. These proved the general profiles to be correct.

The calculations of particle trajectories show a transmission of near 100% of $0.1\text{--}10\mu\text{m}$ size particles in the inlet and processing section.

2.4. FINCH: detection of ice nuclei and droplets

Cloud-active aerosols grow to supercooled droplets or ice crystals of $5\text{--}10\mu\text{m}$ size while they travel through the processing chamber. For the detection and discrimination of super-cooled droplets and ice-crystals we have developed a new optical detector, shown in Fig. 4a.

It is based on the different depolarization of scattered light by ice crystals and by droplets, as described by Hu et al. (2003). The Stokes vector (I, Q, U, V), describing the state of

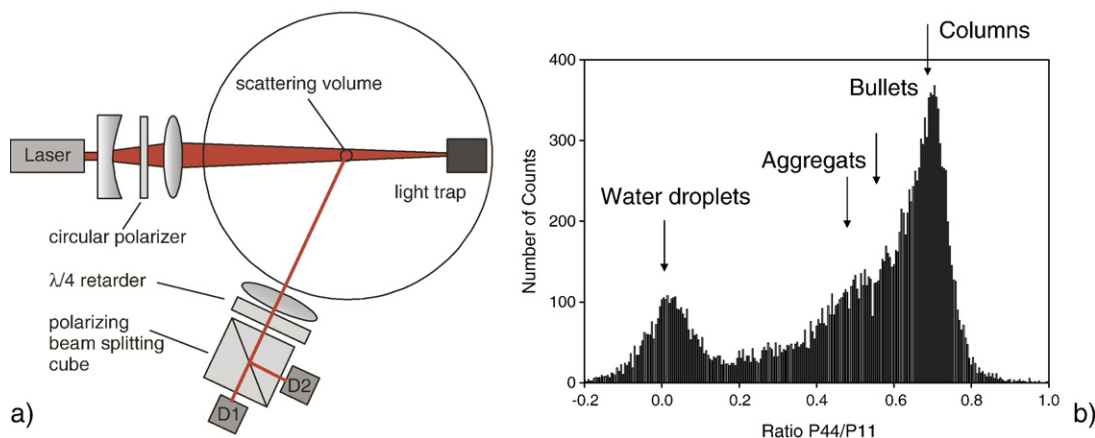


Fig. 4. Schematic diagram of the optical sensor for detection and discrimination of super-cooled droplets and ice-crystals (left). The right graph shows the Histogram (frequency of occurrence) of FINCH measurements as function of the ratio P44/P11 of scattered light from single particles. P11 and P44 are elements of the scattering matrix.

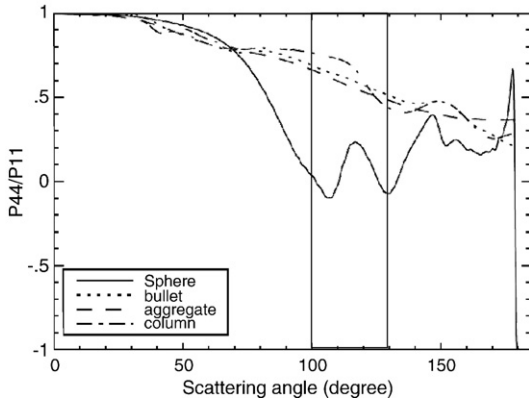


Fig. 5. Ratio P44/P11 as function of scattering angle for different ice crystals types (bullet, aggregate and column) as well as water droplets (spheres). The FINCH detection range is marked between 100 up to 130° scattering angle (Adapted from Hu et al. (2003)).

polarization of the radiation after scattering is given by the product of the scattering matrix and the Stokes Vector of the incident radiation (I_0, Q_0, U_0, V_0).

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{11} & P_{12} & 0 & 0 \\ P_{12} & P_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P_{33} & P_{34} \\ 0 & 0 & -P_{34} & P_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_0 \\ Q_0 \\ U_0 \\ V_0 \end{pmatrix} \quad (1)$$

The Stokes Vector can be easily derived by measuring the intensity P_x of the radiation at different polarized directions

(here the index x indicates the direction of linear polarization. The index $X=RZ$ and $X=LZ$ describes right circular and left circular polarization, respectively).

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{0^\circ} + P_{90^\circ} \\ P_{0^\circ} - P_{90^\circ} \\ P_{45^\circ} - P_{135^\circ} \\ P_{RC} - P_{LC} \end{pmatrix} \quad (2)$$

If the incident radiation of unity intensity ($I=1$) is completely right circular polarized, then the Stokes Vector becomes (1, 0, 0, 1). The Stokes Vector of the scattered radiation then reads

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ P_{12}/P_{11} \\ P_{34}/P_{11} \\ P_{44}/P_{11} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{11} & P_{12} & 0 & 0 \\ P_{12} & P_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P_{33} & P_{34} \\ 0 & 0 & -P_{34} & P_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (3)$$

In the experimental setup of our optical detector (Fig. 4a) a Laser beam (primary linear polarized) passes first a circular polarizer before entering the detection volume. Thus his normalized Stokes Vector reads (1, 0, 0, 1). Droplets and ice crystals scatter this incident beam of radiation. Backscattered light is detected and analyzed for the circular polarization (Component V of the Stokes Vector) at 115° scattering angle. Therefore the scattered light passes a $\lambda/4$ retarder (quarter wave plate) and a polarizing beam splitting cube to analyze for P_{LC} and P_{RC} . The quarter wave plate converts the circularly polarized light into linear polarized light that is polarized at either 45° or 135° from the principal axis, depending on the direction of rotation of the incident circular polarization. The

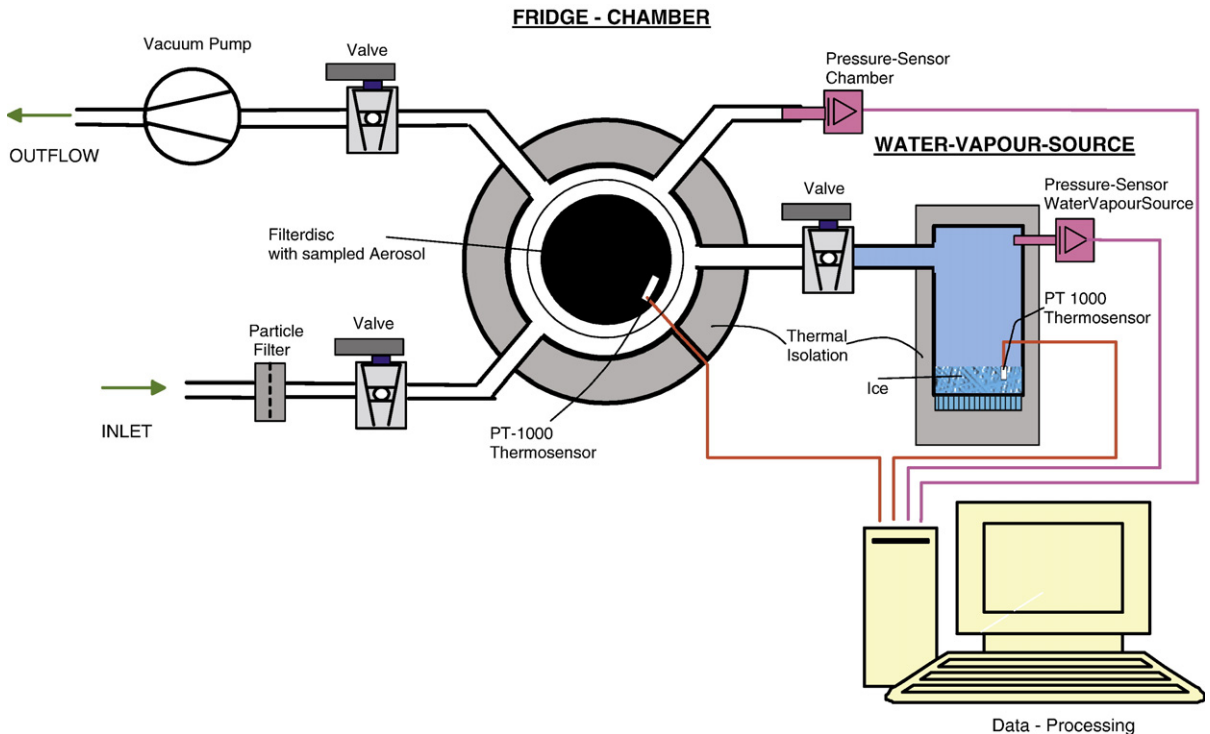


Fig. 6. FRIDGE (Frankfurt Ice Deposition freezing Experiment) schematic diagram.

quarter wave plate is followed by a polarizing beam-splitter oriented to separate the components of linear polarized light. Separate detectors measure the two perpendicular linear polarized beams emanating from the polarizing beam splitter which give the values of P_{LC} and P_{RC} respectively. Thus it is possible to determine the ratio of P_{44}/P_{11} by normalization of V with $I=P_{RC}+P_{LC}$. Following Hu et al. (2003) this ratio shows a maximal difference for water droplets and different types of ice crystals as a function of scattering angle at a $\pm 15^\circ$ range centred at 115° scattering angle (See Fig. 5).

Thus it is possible to discriminate droplets with a high accuracy from crystals. (see Fig. 4b).

2.5. The FRankfurt Ice Deposition freezinG Experiment: FRIDGE

We have recently set up the static diffusion chamber FRIDGE for the activation and counting of ice nuclei sampled on filter substrates. This device, which was first set up by Meyer and Gravenhorst (1976), was rebuilt using state of the art equipment (Bundke et al., 2006c, Klein et al., 2007). Its combination of the low-tech sampling approach with modern sample and data processing methods promises easy sampling for the establishment of an environmental climatology of IN, and allows us to make comparison between our present work and the one made earlier, as well as to compare to in situ-methods.

Aerosol is sampled on 47 mm diameter cellulose nitrate membrane filters (Millipore HABPO4700). For the measurement of IN number, filters are exposed inside FRIDGE to sub-freezing temperatures and ice supersaturation. Filters are placed on top of a Peltier cooled plate, using a little amount of Vaseline™ to enhance the heat transfer.

Using a micro PT1000 Sensor on the filter surface, the filter surface temperature is directly controlled via a PID controller by adjusting the cooling rate of the Peltier element. The chamber is connected to a water vapor source (see Fig. 6) and a turbo-molecular pump. After evacuating the chamber and connection to the vapour source the resulting pressure in the chamber depends only on the temperature of the vapour source. The water vapor supersaturation over the filter surface is derived from the pressure in the chamber and the temperature of the filter. The water vapor pressure is measured by a Datametrics barocell pressure sensor and is controlled (PID) by adjusting the temperature of the water vapour source. Thus it is possible to adjust the filter temperature and the corresponding supersaturation with an accuracy of typically below 0.03 K and 0.7% RH_{ice} at -10°C and 1.5% RH_{ice} , at -25°C respectively.

Upon activation, ice nuclei on top of the filter surface grow to macroscopic ice crystals and are observed by a CCD camera and counted by an automatic picture analysis software (Fig. 7). All instrumental parameters are fully controlled via LABVIEW™. Since the coordinates of each individual ice

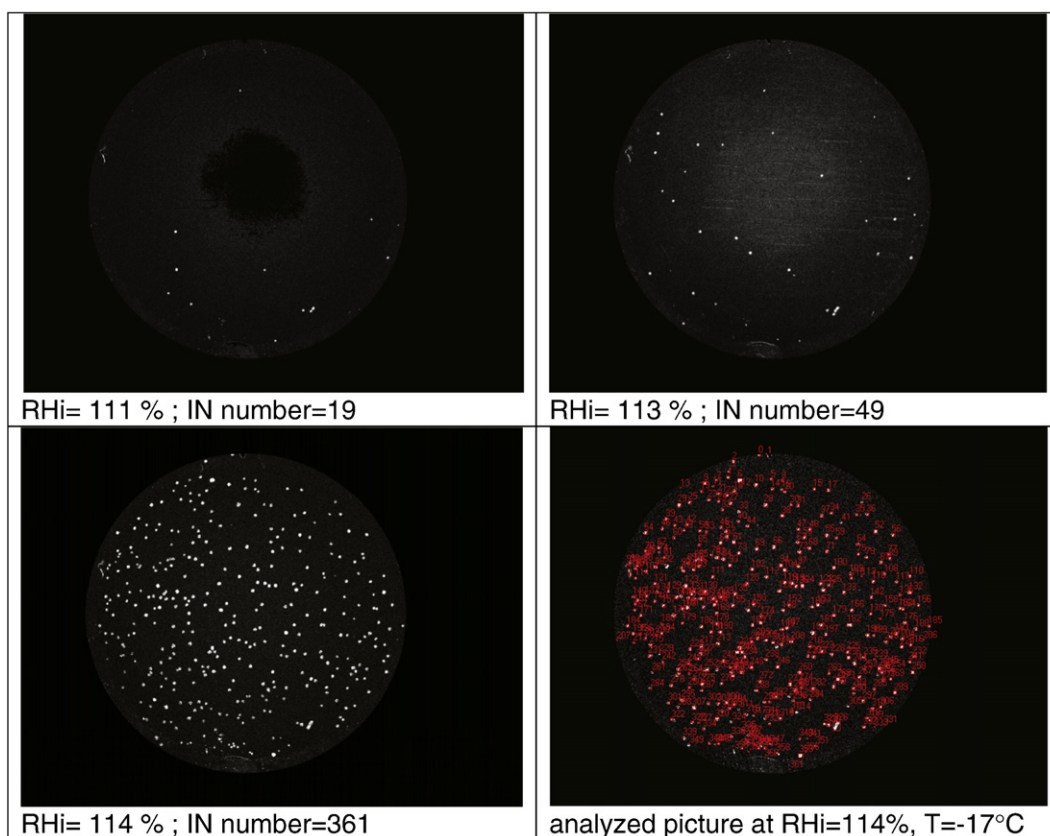


Fig. 7. Typical IN activation of an atmospheric aerosol filter sample within the FRIDGE chamber. The first IN activation here is observed at 111% RH_{ice} . The number of ice crystals increases rapidly with rising RH_{ice} . All images are differential images between a real image taken at the activating conditions T , RH_{ice} and a reference taken before activation. Grayscale Differences are magnified by a factor of 9.

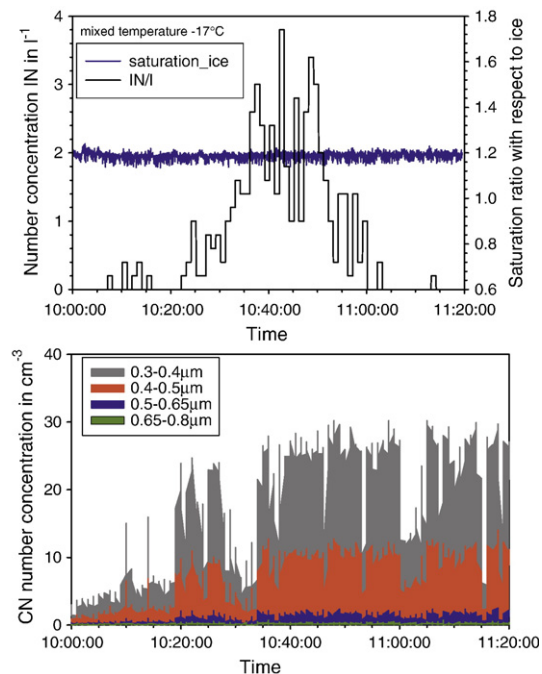


Fig. 8. IN and CN measurements at Jungfraujoch station during an event of cloud formation. The upper graph shows the IN number concentration measured by FINCH at -17°C and 1.2 saturation ratio with respect to ice. The lower part shows the CN number concentration measured for different size classes using a Grimm Optical Particle Counter (OPC) operated by the MPI Chemie Mainz by J. Schneider.

particle on the filter are recorded, the filters can be reanalyzed with ease by electron microscopy.

3. Results and discussion

3.1. First Measurements during CLACE 6

The capabilities of FINCH were first exhibited during the CLACE 6 experiment. As an example Fig. 8 shows the number-

concentration of IN as 1 min average values during a cloud event. Boundary layer air reached Jungfraujoch station at 10:30, where CN increased (see Fig. 8b). Fig. 8a shows that the IN concentration rose up to 4 IN/l until at 10:50 a cloud reached the station. IN concentration then fell rapidly but CN remained at a constant level. IN were incorporated into hydrometeors, which could not enter the inlet. The temperature and supersaturation were kept constant at -17°C and 20% with respect to ice, to be comparable with ambient conditions.

3.2. Laboratory measurements

Using FINCH and FRIDGE we have determined the number concentration of IN in various test aerosols as a function of supersaturation and temperature. Fig. 9 displays our measurements of kaolinite test dust by FINCH in terms of the activation ratio, i.e. the number of IN divided by the maximum number of IN observed at the highest supersaturation. A steep increase of activation ratio below -16.5°C and above 20% of ice supersaturation is apparent.

Fig. 10 compiles measurements of the temperature and supersaturation at the onset of icing on various test substances by FINCH, and FRIDGE, together with those of Schaller and Fukuta (1979) and Zimmermann et al. (2007). In our measurements the first ice was considered to be present when the activated fraction of IN exceeded a threshold of 2% of the maximum value. The different measurements agree reasonably well within the errors of the measurements. The FINCH data of Fig. 9 were measured within one hour, thus supporting the adverb “Fast” in the instruments name.

3.3. Conclusion and outlook

The instruments FINCH for fast in situ-counting and FRIDGE for off line-counting of atmospheric ice nuclei have been set up and tested. Temperature and saturation ratio of nucleation are controlled automatically and precisely. FINCH is well characterized by fluid mechanic calculations and inter-comparison measurements. Both measurement devices have

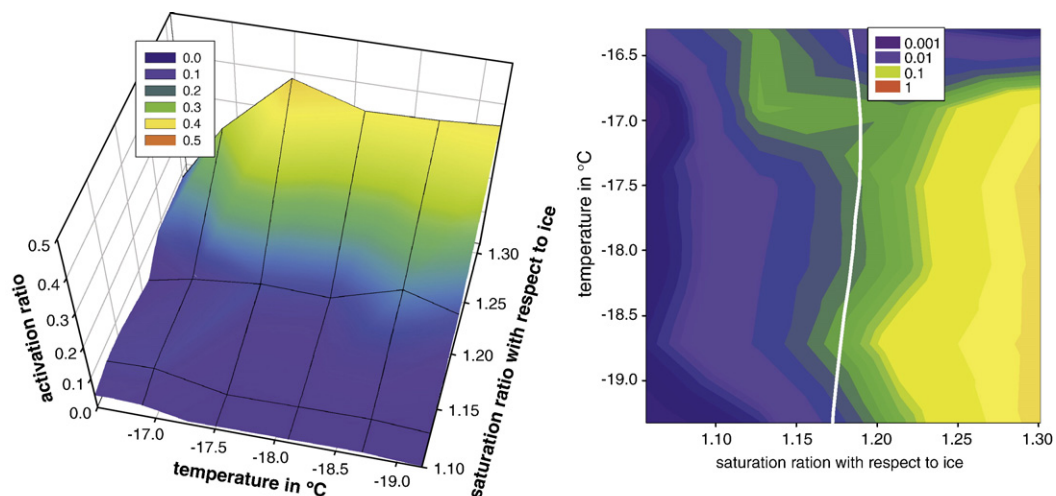


Fig. 9. First Laboratory studies are made with test aerosol. Here as an example we dispersed pure kaolinite and measured the 3 dimensional IN spectra as a function of temperature and relative humidity. Fig. 8b shows the same dataset in a 2 dimensional contour plot. The white line indicates the kaolinite ice onset temperature measured by Schaller and Fukuta (1979).

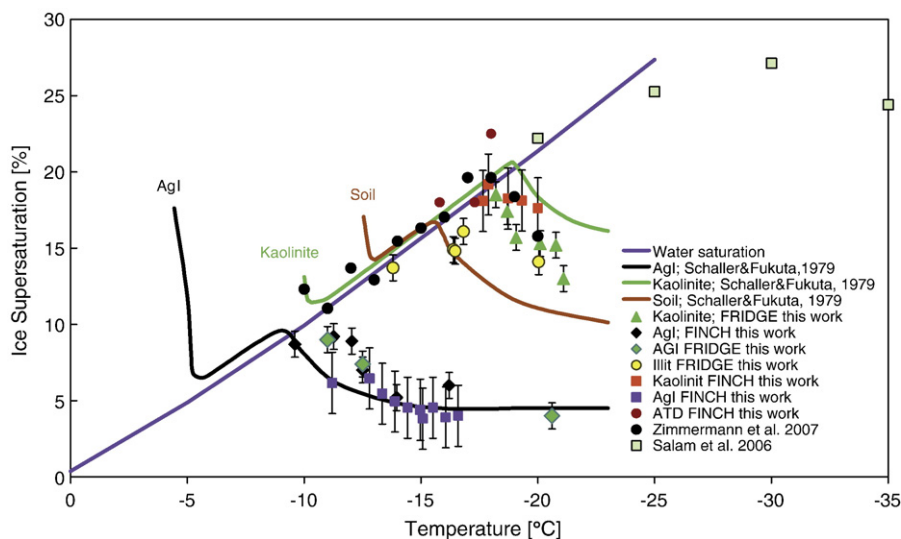


Fig. 10. Ice onset temperatures of Silver iodide (AgI), Kaolinite, Illite and Arizona Test Dust (ATD) measured with FINCH and Silver iodide measured with FRIDGE in comparison with data published by Schaller and Fukuta (1979), Salam et al. (2006), Zimmermann et al. (2007).

passed successfully their first field campaign at the Jungfraujoch station.

FINCH samples at a high time resolution and thus is able to scan three dimensional spectra of IN (number as function of temperature and supersaturation) very rapidly.

A refined version of FINCH will be integrated into to the German Research Aircraft HALO for airborne operation. For chemical analysis of individual IN it is planned to couple FINCH to a single particle mass spectrometer (Kürten et al., 2007). For the detection of biological IN a fluorescence channel will be added to the detection system. The large scale biogeographical distribution of IN will be investigated by measurements onboard RV-“Polarstern”.

Acknowledgement

This work has been performed within Project A1 of the Collaborative Research Centre (SFB) 641 “The Tropospheric Ice Phase”, funded by the German Science Foundation. Logistical support by the European Community – Research Infrastructure Action under the FP6 “Structuring the European Research Area” Programme, EUSAAR Contract N° RI3-CT-2006-026140.

References

- Al-Naimi, R., Saunders, C.P.R., 1985. Measurements of natural deposition and condensation-freezing ice nuclei with a continuous flow chamber. *Atmos. Environ.* 19, 1871–1882.
- Bundke, U., Bingemer, H., Wetter, T., Nillius, B., Jaenicke, R., 2006a. The FINCH (Frankfurt Ice Nuclei Chamber) Counter – new developments and first measurements. 7th International Aerosol Conference September 10–15, 2006 St. Paul, MN, USA, p. 1350.
- Bundke, U., et al., 2006b. A new, fast Frost/Dew point hygrometer with an active sensor area of 4 mm². *Proceedings of the EGU*.
- Bundke, U., Bingemer, H., Klein, H., 2006c. The FRIDGE Frankfurt “INn Deposition freezinG Experiment”. 7th International Aerosol Conference September 10–15, St. Paul, MN, USA, p. 1437.
- DeMott, P.J., Sassen, K., Poellet, M.R., Baumgardner, D., Rogers, D.C., Brooks, S.D., Prenni, A.J., Kreidenweis, S.M., 2003a. African dust aerosols as atmospheric ice nuclei. *Geophys. Res. Lett.* 30 (14), 1732. doi:10.1029/2003GL017410.

- DeMott, P.J., Cziczo, D.J., Prenni, A.J., Murphy, D.M., Kreidenweis, S.M., Thomson, D.S., Boris, R., Rogers, D.C., 2003b. Measurements of the concentration and composition of nuclei for cirrus formation. *Proc. Natl. Acad. Sci.* 100, 14655–14660.
- Findeisen, R., 1938. *Meteorologisch-physikalische Begebenheiten der Vereisung in der Atmosphäre*. Hauptversammlung 1938 der Lilienthal-Gesellschaft.
- Hu, Y.X., Yang, P., Lin, B., Gibson, G., Hostetler, C., et al., 2003. Discriminating between spherical and non-spherical scatterers with lidar using circular polarization: A theoretical study. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 79–80, 757–764.
- Klein, H., Bingemer, H.G., Bundke, U., Wetter, T., 2007. Measurements of atmospheric ice nuclei using a vacuum diffusion chamber and CCD detection. *Proceedings of the EGU2007-A-08430*.
- Kürten, A., Curtius, J., Helleis, F., Lovejoy, E.R., Borrmann, S., 2007. Development and characterization of an ion trap mass spectrometer for the on-line chemical analysis of atmospheric aerosol particles. *Int. J. Mass Spectrom.* 265, 30–39.
- Levin, Z., Cotton, W., 2007. Aerosol pollution impact on precipitation: a scientific review. The WMO/IUGG International Aerosol Precipitation Science Assessment Group (IAPSAG). World Meteorological Organization, Geneva.
- Meyer, D., Gravenhorst, G., 1976. A low pressure diffusion chamber. In: Vali, G. (Ed.), *III. International workshop on ice nucleus measurements*, Laramie (Wyo) 1975, pp. 128–148.
- Meyers, M.P., DeMott, P.J., Cotton, W.R., 1992. New primary ice-nucleation parameterizations in an explicit cloud model. *J. Appl. Meteorol.* 31, 708–721.
- Rogers, D.C., 1982. Field and laboratory studies of ice nucleation in winter orographic clouds. Ph.D. dissertation, Dept. Of Atmospheric Science, Univ. Of Wyoming, Laramie, 161 pp.
- Rogers, D.C., 1988. Development of a continuous flow thermal gradient diffusion chamber for ice nucleation studies. *Atmos. Res.* 22, 149–181.
- Rogers, D.C., DeMott, P.J., Kreidenweis, S.M., Chen, Y., 1998. Measurements of ice nucleating aerosols during SUCCESS. *Geophys. Res. Lett.* 25 (9), 1383–1386.
- Rogers, D.C., DeMott, P.J., Kreidenweis, S.M., Chen, Y., 2001a. A continuous-flow diffusion chamber for airborne measurement of ice nuclei. *J. Atmos. Ocean. Technol.* 18, 725–741.
- Rogers, D.C., DeMott, P.J., Kreidenweis, S.M., 2001b. Airborne measurements of tropospheric ice-nucleating aerosol particles in the Arctic spring. *J. Geophys. Res.* 106, 15,053–15,063.
- Salam, A., et al., 2006. Ice nucleation studies of mineral dust particles with a new continuous flow diffusion chamber. *Aerosol Sci. Tech.* 40, 134–141.
- Schaller, R.C., Fukuta, N., 1979. Ice nucleation by aerosol particles: experimental studies using a wedge-shaped ice thermal diffusion chamber. *J. Atmos. Sci.* 36, 1788–1802.
- Vali, G., 1975. Ice nucleation workshop. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 56, 1180–1184.
- Zimmermann, F., et al., 2007. Environmental scanning electron microscopy (ESEM) as a new technique to determine the ice nucleation capability of individual atmospheric aerosol particles. *Atmos. Environ.* 41, 8219–8227. doi:10.1016/j.atmosenv.2007.06.023.

Kapitel 4

**A new method for sampling atmospheric ice nuclei with
subsequent analysis in a static diffusion chamber**

ATMOSPHERIC RESEARCH (accepted 12.8.2009)
(Erstautor, Klein et al., 2009)

**(Holger Klein, Werner Haunold, Ulrich Bundke, Bjoern
Nillius, Thomas Wetter, Stephan Schallenberg und Heinz
Bingemer)**

(publizierte Version)
(published Version)



A new method for sampling of atmospheric ice nuclei with subsequent analysis in a static diffusion chamber

Holger Klein, Werner Haunold, Ulrich Bundke, Bjoern Nillius, Thomas Wetter, Stephan Schallenberg, Heinz Bingemer^{*}

Institute for Atmospheric and Environmental Sciences, Goethe - University, Altenhöferallee 1, D-60438 Frankfurt/M., Germany

ARTICLE INFO

Article history:

Received 5 December 2008

Received in revised form 27 July 2009

Accepted 12 August 2009

Keywords:

Aerosol

Ice nuclei

Sampling technique

ABSTRACT

A new technique for the sampling of atmospheric ice nuclei is presented. Aerosols are electrostatically precipitated onto silicon discs, and are subsequently analyzed in a diffusion chamber. The method is compared to continuous flow chamber measurements and to membrane filter measurements of ice nuclei. Ice nucleus measurements obtained using this new method compare well to the continuous flow chamber measurements. In contrast, membrane filters were found to lead to serious underestimates of the ice nuclei number concentration when the filters were treated with a pore sealant and analyzed under vacuum. This confirms previous findings of other authors.

The electrostatic aerosol collection device is lightweight and easy to handle.

© 2009 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Aerosols which are active in clouds act as Cloud Condensation Nuclei (CCN) or Ice Nuclei (IN), and are an essential ingredient for the formation of tropospheric clouds, affecting both the formation and the properties of clouds. The cloud albedo effect of anthropogenic aerosols on radiative forcing in the global climate system has been assigned by far the highest uncertainty of all anthropogenic perturbations, and a low level of scientific understanding (IPCC, 2007). Measurements of these aerosols still remain scarce, and we are still far from a climatological view on these atmospheric constituents.

Ice nuclei are defined operationally as those atmospheric aerosol particles that generate ice on their surface when the aerosol is exposed to sub-freezing temperatures and supersaturation with water vapor. Such conditions are provided for the measurement of IN in continuous flow chambers (CFC) (Rogers et al., 2001; Hussain and Saunders, 1984; Bundke et al., 2008; Stetzer et al., 2008), as well as in chambers that expose a substrate laden with aerosol particles from the atmosphere (Bigg et al., 1963; Stevenson, 1968; Bigg, 1990) to such

conditions. The ice crystals that grow on the nuclei are subsequently counted. These methods usually address the deposition freezing mode (and the condensation freezing mode close to water saturation). Continuous flow techniques have a high time resolution compared to off-line techniques, but at the expense of a high experimental and logistical effort for field measurements. In their most advanced form these techniques are coupled to spectrometers for the analysis of the composition of individual particles (Kreidenweis et al., 1998; Cziczo et al., 2003; Kamphus et al., 2007). If high time resolution is not required, such as in ground-based and monitoring activities, off-line techniques may be more advantageous. A method that was first proposed by Bigg et al. (1963) and which has been widely applied is the collection of aerosols on membrane filters (in the following referred to as “the filter method”), followed by the activation of ice nuclei in a diffusion chamber and the counting of the ice crystals grown. Various different types of processing chambers have been used (Bigg et al., 1963; Langer and Rodgers, 1975; Meyer and Gravenhorst, 1976; Stein and Georgii, 1985; Fountain and Othake, 1985; Hussain and Kayani, 1988). The method is easy to handle, but can be affected by a potential depletion of water vapor through hygroscopic particles on the substrate, which may suppress the “activation” of some ice nuclei. This artifact is known as the “volume effect”,

^{*} Corresponding author.

E-mail address: bingemer@iau.uni-frankfurt.de (H. Bingemer).

as it appears to be proportional to the volume of air sampled. Among several proposed measures to overcome this effect (Huffman and Vali, 1973; Lala and Jiusto, 1972; Langer and Rodgers, 1975; Bigg, 1990) Gravenhorst et al. (1975) reduced the pressure in their diffusion chamber to enhance the diffusion of water vapor and thus counteract the vapor depletion.

Questions regarding the efficiency of the filter method have been raised as a result of comparisons between the filter method and continuous flow systems. Hussain and Kayani (1988) found that (at water saturation) their CFC detected a factor of 14 ± 4 more ice nuclei than their static diffusion chamber. Archuleta (2002) compared results of measurements over the Arctic Ocean using the Colorado State University's continuous flow diffusion chamber (Rogers, 1988) to filter samples that were collected in parallel to the measurements and that were analyzed by the dynamic filter processing chamber of CSU (Langer and Rodgers, 1975). She concluded "that filter processing severely underestimates the number of ice nuclei", on average by a factor of 33 (Archuleta, 2002).

We have experienced similar deficiencies in the filter method in our own laboratory, which led us to develop a new method for the electrostatic precipitation of ice nucleating aerosols on electrically conductive solid substrates. We have built a vacuum diffusion chamber to activate and count ice nuclei on these substrates using state of the art technology. This chamber, which was briefly introduced by Bundke et al. (2008), is described in more detail in chapter 2.1. The new electrostatic aerosol collection method is described in chapter 2.2, and is intercompared to continuous flow chamber IN measurements in chapter 3.1. Chapter 3.2 reevaluates the filter method by comparing it to both the new method and to the continuous flow IN measurements.

2. Experimental

2.1. The detection of ice nuclei in the static vapor diffusion chamber FRIDGE

A static vacuum vapor diffusion chamber, FRIDGE (Frankfurt Ice Nuclei Deposition Freezing Experiment, Bundke et al., 2008), was built for the activation, growth and counting of ice nuclei collected on substrates. It is based on the design by Meyer and Gravenhorst (1976), but uses state of the art equipment. This device can be used for the analysis of ice nuclei collected on any type of substrate of up to 50 mm diameter.

The cylindrical body of the chamber (brass, inner diameter: 70 mm, height: 30 mm) has separate top and bottom halves (Fig. 1) which are sealed together by O-rings. Both parts are mounted on a slide rail, allowing them to be separated vertically. Thus the chamber can be opened to allow substrates to be placed on the central Peltier-cooled plate in the lower part of the chamber, or to be removed. The top part of the chamber is connected to an external water vapor source, to a vacuum pump (Leybold turbomolecular TP50), and to pressure gauges (Datametrics barocell). The water vapor source is an 800 ml cylindrical, thermostatically controlled stainless steel vessel containing ice. The growth of ice crystals on the substrate is observed by a CCD camera (Allied Oscar F-510, 2588×1958 pixels, magnification: 13.6) through the glass-window on top of the chamber. The sample is illuminated by an LED-ring (Schott, VISILED S40-55, 40

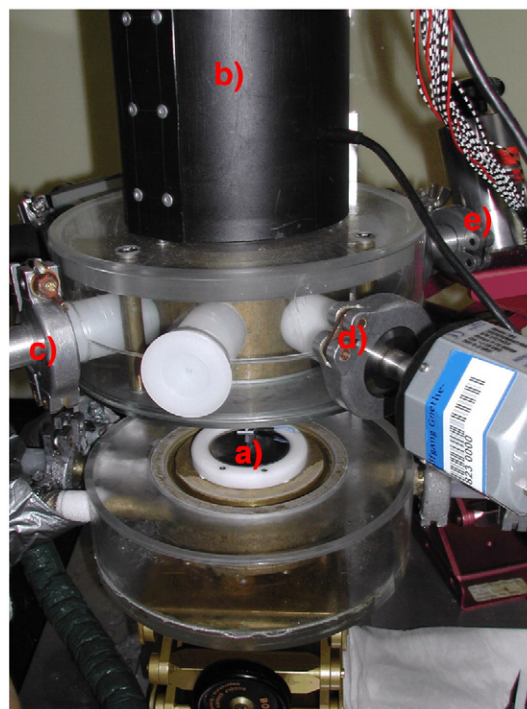


Fig. 1. Photograph of the vacuum diffusion chamber FRIDGE while it is open to allow the exchange of samples. The cooled table for the substrate (a) is in the lower part, and the CCD camera (b), connectors to the water vapor source (c), pressure measurement (d) and vacuum pump (e) in the upper part.

High Brightness LEDs, color-temperature 5600 K). The surface temperature of the substrate is measured by a micro PT1000 sensor on the substrate surface, and is directly controlled in the range of 0°C to -35°C by adjusting the cooling rate of the Peltier element via a PID controller. The temperature varies by less than 0.04°C (at -13°C) over the entire surface, when silicon discs (described in chapter 2.2) are used as a substrate. The mean \pm standard deviation of the temperature measurements at the center and at two locations near the edges of the disc were: $-12.98 \pm 0.023^\circ\text{C}$, $-13.01 \pm 0.036^\circ\text{C}$ and $-12.98 \pm 0.037^\circ\text{C}$, respectively. All instrumental parameters are fully controlled via LABVIEW™.

Samples are processed as follows: A substrate laden with aerosol is placed on the filter table. The surface temperature sensor is placed near the edge of the substrate. The chamber is closed, evacuated (1 min), and cooled to the desired temperature (2 min). A reference picture of the substrate is taken prior to activation of the nuclei and ice crystal growth. This picture is later subtracted from the images recorded after activation, in order to eliminate inhomogeneities of the substrate background. Water vapor is now introduced by opening the connection to the vapor source. The resulting pressure in the chamber only depends on the temperature of the vapor source. The water vapor supersaturation over the substrate surface is calculated from the pressure in the chamber and the temperature of the surface. The water vapor pressure is measured by a Datametrics barocell pressure sensor and is controlled (PID) by adjusting the temperature of the water vapor source. Thus it is possible to adjust the substrate temperature and the corresponding supersaturation

with an accuracy of typically around 0.05 K and 0.7% RH_{ice} at -10°C , or 1.5% RH_{ice}, at -25°C , respectively. The CCD camera monitors the growth of ice for 100 s after water vapor has been introduced into the chamber. The number of ice crystals is usually stable after 90 s. Monochromatic pictures (green) are saved every 10 s. The number of ice crystals (i.e. the IN number) is counted every 5 s from the difference between the actual picture and the reference picture by automatic picture analysis software. Fig. 2a shows a differen-

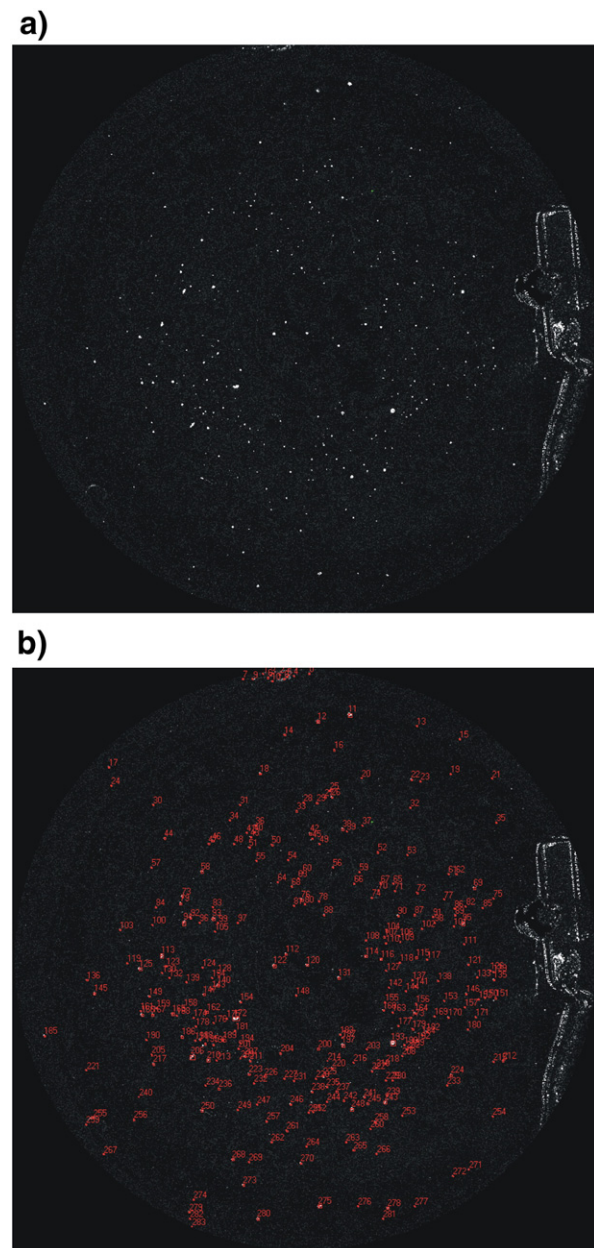


Fig. 2. (a) Differential picture recorded 90 s after introduction of water vapor to a 101 ambient air sample (31.5 IN/L) collected by EAC on a silicon disc and activated at -13°C and 113% saturation (ice). (b) shows the same picture after the ice crystals (i.e. ice nuclei) have been counted by the picture analysis software. The structure on the right side is the surface temperature sensor.

tial picture of an environmental sample (activated at -13°C and 113% ice-saturation) that was recorded 90 s after the introduction of water vapor. Fig. 2b shows the same sample after the crystals have been counted by the picture analysis software. The brightness of the differential picture is amplified by a factor of 45. A minimum of 3 pixels with a brightness above 82% is usually defined the threshold for a cluster to be counted as an ice crystal. After the pictures have been saved, the sample can be analyzed again at a different temperature and supersaturation. To enable this, the connection to the vapor source is shut off and the chamber is evacuated. The ice crystals evaporate, and new conditions may then be selected.

2.2. The electrostatic collection of ice nuclei

An electrostatic aerosol collector (EAC) has been designed to sample ice nuclei on substrates (Patent cooperation treaty No. EP2009/004869). The basic requirements were a) homogeneous precipitation of the aerosol particles over the surface of a solid, hydrophobic substrate, in order to avoid clustering of ice crystals growing on the substrate, and b) to avoid losses or production of aerosol by the charging electrode.

In the EAC (Fig. 3) aerosol is introduced through a central inlet into a “shower” of electrons that are emitted by 12 gold wire electrodes in a concentric, annular arrangement. The aerosols are negatively charged and are carried to the positively charged surface of the substrate and deposited there. A voltage of 15,000 V is applied between the electrodes. The sampler vessel is made of borosilicate glass (Duran 50, Schott). Seals and insulators are made of Teflon. Of the several substrates that were tested, silicon wafers (Wacker-Siltronic, thickness: 0.7 mm, diameter: 45 mm) gave the best results with respect to the ice nuclei count on blank samples.

To evaluate the aerosol retention efficiency E of the EAC a flow of ambient aerosol was continuously pumped through the EAC, and the number concentration and size distribution of the aerosol that passed the EAC were measured by a Condensation Particle Counter (CPC, TSI 3785) and a Scanning Mobility Particle Sizer™ (SMPS, TSI 3936), respectively. A sigma-2 inlet (Köhler et al., 2007) and a glass tube of $2\text{ m} \times 25\text{ mm}$ I.D were used to introduce ambient air into the EAC. During these measurements the EAC was first operated for 10 min without applying high voltage (i.e. without electrostatic precipitation) and the resulting concentration C_0 was measured. After that the EAC was switched to normal operating conditions (i.e. with high voltage), and the concentration C_N was measured. The retention efficiency E is calculated from the number concentration C_N in normal mode and C_0 at zero voltage by

$$E = 1 - C_N / C_0. \quad (1)$$

The dependence of E on sample flow rate was evaluated by varying the flow rate from 1 to 5 l/min, and measuring C_N and C_0 as total number concentrations by the CPC. Efficiencies above 94% were found at flow rates below 2 l/min (Fig. 4).

The efficiency as a function of particle size was derived from SMPS measurements of C_N and C_0 in 105 size bins from 9.8 nm to 414 nm particle diameter. Fig. 5 shows an example of the size spectra of C_0 (upper panel), C_N (middle), and of E (lower panel)

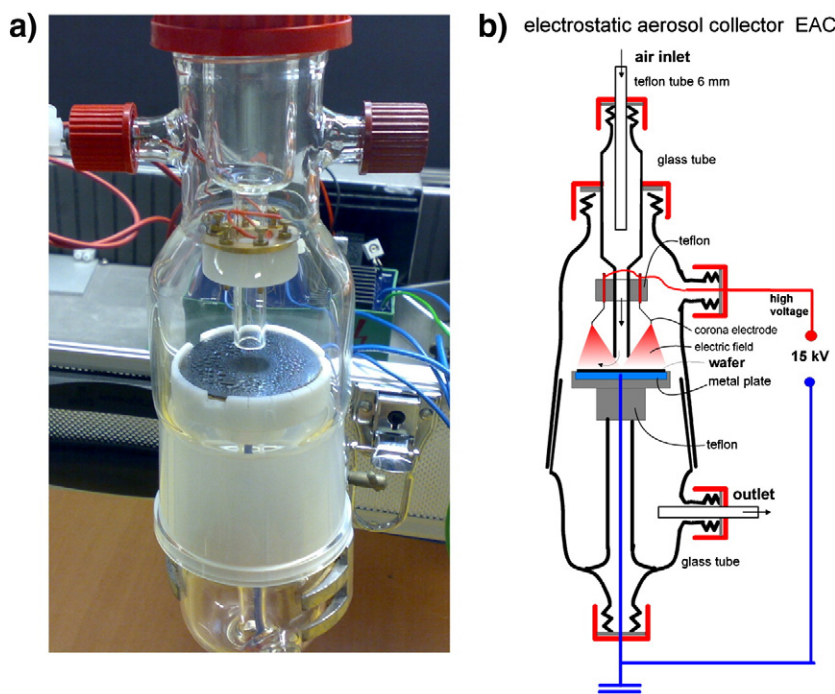


Fig. 3. The electrostatic aerosol collector: (a) photograph, (b) schematic.

derived for each bin using Eq. (1) for an ambient aerosol and a flow rate of 1.5 l/min. The efficiency E for each of the bins is better than 96.7% over the entire size range.

Normal operating conditions for atmospheric measurements of ice nuclei are currently as follows: a flow rate of 2 l/min, a sample air volume of 10–30 l and a sampling time of 5 to 15 min. The wafer discs are placed on the cooling plate of FRIDGE for analysis. The plate is coated with a thin layer of vacuum oil (70 μ l of LABOVAC 12S, Ilmvac, Ilmenau, Germany) that had earlier been degassed under vacuum. Sample processing follows the procedure described in chapter 2.1.

The silicon discs require thorough cleaning before being used for sampling. They are cleaned after analysis, and can be

used multiple times. A batch of 8 discs is cleaned in one procedure, and one of the discs is analyzed as a blank. The seven-step cleaning procedure involves washing in an ultrasonic bath with dichloromethane, hot water with a detergent, 40% nitric acid, and doubly distilled water, drying at 45 °C under vacuum, washing with dichloromethane, and drying at 45 °C under vacuum. It is essential that any damage to the surface of the silicon discs (scratching, or residues of cleaning agent, etc.) during handling and cleaning is avoided, because this will produce artificial nucleation sites and thus erroneous ice nuclei counts. Samples as well as cleaned discs are stored in Petri slides. At present we have no systematic information on the effects of storage and transportation of the samples. The results presented here are from samples that were usually analyzed less than one day after sampling.

3. Results and discussion

3.1. Evaluation of ice nucleus measurements by the EAC/FRIDGE

Parallel measurements of laboratory test aerosols as well as of ambient aerosol were made using both the EAC–wafer–FRIDGE system and the IN-counter FINCH (Fig. 6), which was also developed by our group (Bundke et al., 2008). Ambient aerosol was sampled at 16 m above ground level from our laboratory window at the University campus in northern Frankfurt. The ambient particle concentrations ranged between 3400/cm³ and 4850/cm³ during sampling, as measured by a TSI 3785 CPC. The samples were pumped through 2 m \times 8 mm O.D. copper tubing at 4 l/min and split 1:1 to feed both instruments. The EAC collected 30 l of air during 15 min, whereas some of the FINCH data were averages over only 3.5 min. The deviations between some data with poor overlap

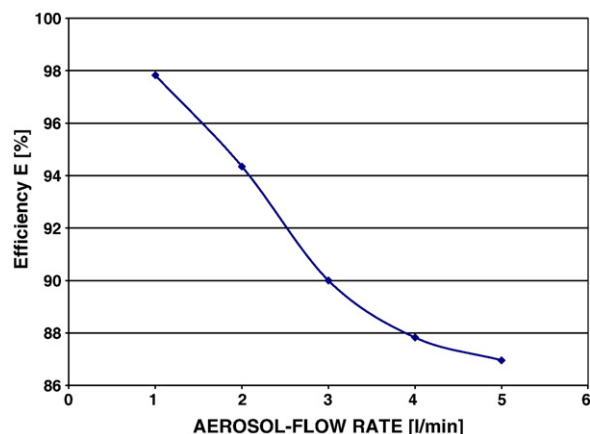


Fig. 4. Aerosol retention efficiency of the EAC (at 12 kV) as a function of sample flow rate from measurements of total particle number concentration by CPC.

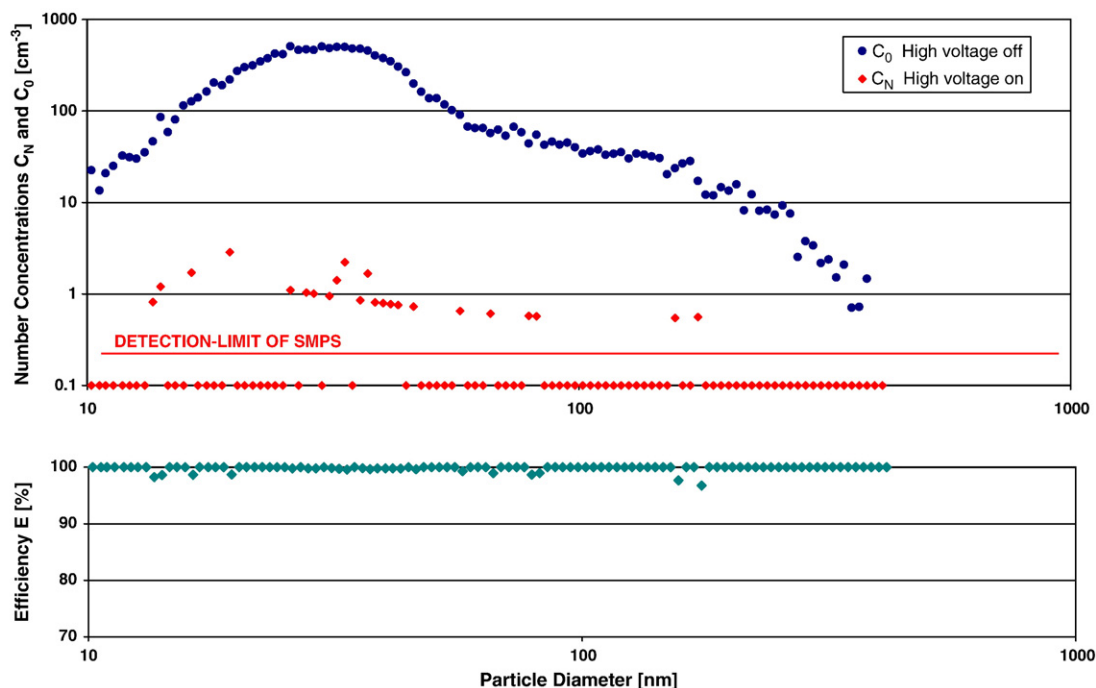


Fig. 5. Measurement of the size spectral retention efficiency of the electrostatic aerosol collector: the fraction of aerosols passing the EAC as a function of particle diameter, particles were measured by Scanning Mobility Particle Sizer TSI 3936.

of the two methods thus represent the sum of experimental uncertainty and ambient aerosol variability (up to $\pm 18\%$). Test aerosols were generated by mechanically stirring and dispersing powders of Arizona Test Dust (ATD) and of a desert dust in a self-constructed 2-stage aerosol generator and diluting it with particle-free air to produce a flow of 4 l/min of polydisperse aerosol. This flow was split 1:1 and sampled by both the EAC and FINCH at 2 l/min each. The desert dust was from a sample that had been collected as sediment during a dust storm in Israel (DeMott et al., 2008). The number concentration, mode diameter, and mean geometric standard

deviation of the test aerosols as measured by a TSI 3321 Aerodynamic Particle Sizer (APS) were $291/\text{cm}^3$, $1.13 \mu\text{m}$ and $1.55 \mu\text{m}$, respectively, for ATD, and $551/\text{cm}^3$, $1.01 \mu\text{m}$, and $1.54 \mu\text{m}$ respectively for the dust from Israel.

Fig. 6 shows a scatter plot of the ice nuclei number concentrations measured by both methods for all aerosols at around -12 to -14°C and 3 to 15% supersaturation (against ice). Overall both methods agree reasonably well. The linear regression $[\text{IN}/I]_{\text{FRIDGE}} = 0.81 [\text{IN}/I]_{\text{FINCH}} + 0.99$ ($R^2 = 0.77$; $n = 26$) is statistically significant at the 99.9% level.

In order to compare our method to other independent methods, we analyzed our ATD samples for the temperature and supersaturation at which 0.1% of the particles was activated (Fig. 7). These data range from -20°C to -33°C , and from 96% to 101% r.h. and compare well to measurements of the same quantity by other methods presented by DeMott et al. (2008).

We thus conclude that the EAC-wafer-FRIDGE setup allows reliable measurements of atmospheric deposition and condensation mode ice nuclei.

The precision of the method was found to be 12.5%, expressed as the mean relative standard deviation of 6 pairs of parallel atmospheric samples, analyzed at -13°C and 110%–113% saturation (ice).

The EAC-wafer-FRIDGE system is currently used for the routine measurement of ice nuclei at the Taunus Observatory 25 km north of Frankfurt. Approximately 600 samples have been analyzed since April 2008. These results will be published separately (Klein, 2009).

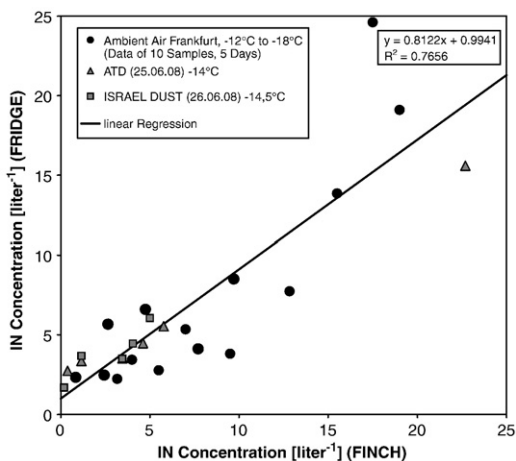


Fig. 6. Scatter plot of ice nucleus concentrations measured in parallel by the fast in situ ice nucleus counter FINCH and by the EAC-wafer-FRIDGE system in ambient air (bullets) and various laboratory test aerosols (triangles and squares) at -12°C to -18°C .

3.2. Reevaluation of the filter method

The filter method has been reevaluated by means of parallel measurements of ice nuclei using filters and also a)

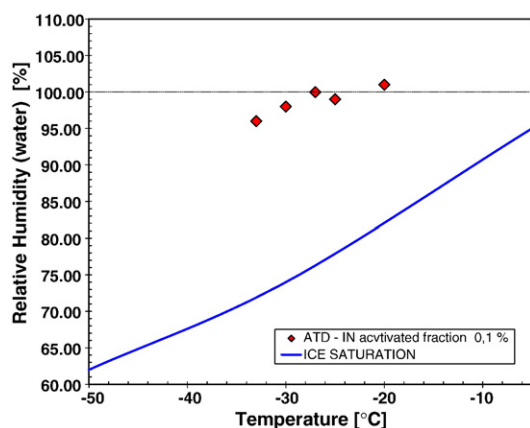


Fig. 7. Temperature and relative humidity at which 0.1% of the particles in Arizona Test Dust aerosol sampled by the EAC onto silicon discs are activated.

the EAC/wafer/FRIDGE setup and b) the continuous flow mixing chamber FINCH (Bundke et al., 2008).

- a) Parallel ambient air samples were taken outside our laboratory on wafer discs using the EAC, and by filtration on Millipore HAP04700 black membrane filters. 500–800 l of ambient air were filtered at 15 l/min. The samples were analyzed by FRIDGE at -14°C and at 4 different supersaturations. The filter table was coated with about 800 μl of molten Vaseline prior to inserting a sample into FRIDGE. The mean ice nuclei number concentrations obtained from the wafer disc samples exceeded the mean concentrations from the filter samples by a factor of 44.6 ± 5.5 ($n=4$), averaged over all supersaturations (Fig. 8).
- b) In order to compare the filter method to FINCH, parallel samples of ambient aerosols, as well as of laboratory test aerosols, were taken using both methods. The results again indicated severe underestimation of the ice nuclei number concentration by the filter measurements. The number concentration was underestimated by a factor of

about 44 ± 7 ($n=8$, at -15°C to -22°C) by the filter measurements, for both atmospheric and laboratory test aerosols. A similar underestimate has already been reported by DeMott et al. (2008) for the filter method as compared to other methods.

A potential reason for the deficiency of our filter measurements may be the application of Vaseline. The common analysis procedure for the detection of ice nuclei on filter samples involves floating the filter on oil or heated Vaseline prior to exposing it to sub-freezing and supersaturation conditions (Stevenson, 1968; Langer and Rodgers, 1975; Roddy, 1978; Bigg, 1990). This provides the required good thermal contact to the underlying cold plate, seals the pores of the filter, and prevents icing of the cold plate and the depletion of vapor. Roddy (1978) raised the question of whether the application of sealants might “drown” and deactivate some of the nuclei, and thus lead to underestimates, whereas Bigg (1990) found no evidence for this.

Additional measurements lead us to conclude that Vaseline evaporates under vacuum and subsequently recondenses onto the ice nuclei, resulting in their deactivation. For this experiment we sampled ice nuclei on silicon wafers, and analyzed these in FRIDGE without applying Vaseline. Vaseline was later added to the edge of the filter table and the substrates (but not in the area where aerosol was precipitated), and the samples were reanalyzed. Of the 22 or 18 ice nuclei per sample, respectively, that were counted prior to applying Vaseline, only 8 per sample were found to nucleate ice later. Presumably such an effect would be even larger in the case of filters that are soaked with Vaseline. It is likely that filter measurements which had used Vaseline under vacuum during their analysis procedure (Stein, 1984; Stein and Georgii, 1985) greatly underestimated the number concentration of ice nuclei.

4. Summary

A new technique for the sampling of atmospheric ice nuclei has been developed and evaluated. Aerosols are

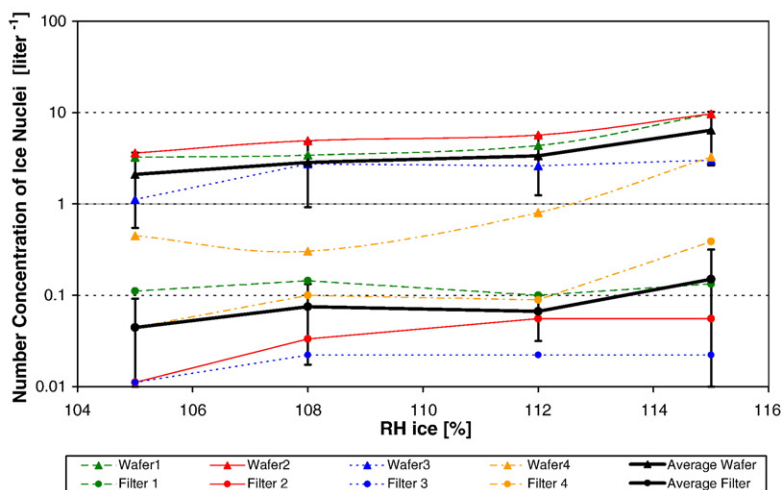


Fig. 8. Intercomparison of membrane filters (bullets) and silicon discs/EAC (triangles) for the sampling of ice nuclei. Samples were processed by FRIDGE at -14°C as function of ice supersaturation).

sampled by electrostatic precipitation onto silicon discs and the ice nuclei are subsequently analyzed in a static vacuum vapor diffusion chamber. The method has been compared to the conventional membrane filter method for ice nuclei and to other methods, including continuous flow chamber measurements. Ice nucleus measurements using this new method compare well to continuous flow chamber measurements. The electrostatic aerosol collection on silicon discs is easy to handle. The battery-powered sampling device weighs about 3 kg and is mounted in a case for field operation. It appears to be suitable for off-line monitoring of atmospheric ice nuclei, and could eventually meet the growing demand for measurements and monitoring of ice nuclei (Stevens, 2008) as an important parameter, that relates microphysical aerosol properties to the development of clouds and precipitation.

Membrane filters were found to lead to serious underestimates of the ice nuclei number concentration, when the filters were treated with a pore sealant and analyzed under vacuum. This confirms previous findings of other authors.

Acknowledgement

This work was funded by the German Science Foundation DFG as part of the Collaborative Research Centre SFB 641 “The Tropospheric Ice Phase”.

References

- Archuleta, 2002. Membrane filter processing vs. CFDC measurements of IN concentrations. Paper prepared for Colorado State University Atmospheric Science Advanced Cloud Physics class supervised by Professor William Cotton.
- Bigg, K.E., 1990. Measurement of concentrations of natural ice nuclei. *Atmos. Res.* 25, 397–408.
- Bigg, E.K., Mossop, S.C., Meade, R.T., Thorndike, N.S.C., 1963. The measurement of ice nucleous concentrations by means of Millipore filters. *J. Appl. Meteorol.* 2, 266–269.
- Bundke, U., Nillius, B., Jaenicke, R., Wetter, T., Klein, H., Bingemer, H., 2008. The Fast Ice Nucleus Chamber FINCH. *Atmos. Res.* doi:10.1016/j.atmosres.2008.02.008.
- Cziczo, D.J., DeMott, P.J., Brook, C., Hudson, P.K., Jesse, B., Kreidenweis, S.M., Prenni, A.J., Schreiner, J., Thomson, D.S., Murphy, D.M., 2003. A method for single particle mass spectrometry of ice nuclei. *Aerosol Sci. Technol.* 37, 460–470.
- DeMott, P.J., et al., 2008. The Fourth International Ice Nucleation Workshop (ICIS-2007): objectives and preliminary results. 15th Int. Conference on Clouds and Precipitation, Cancun.
- Fountain, A., Othake, T., 1985. Concentration and source areas of ice nuclei in the Alaskan atmosphere. *J. Clim. Appl. Meteorol.* 24, 377–382.
- Gravenhorst, G., Georgii, H.-W., Grosch, M., Meyer, D., 1975. A low pressure diffusion chamber for ice nuclei detection. *Proc. 8th Int. Conf. on Nucleation, Hydrometeorology of the U.S.S.R., Moscow*, pp. 283–288.
- Huffman, P.J., Vali, G., 1973. The effect of vapor depletion on ice nucleous measurements with membrane filters. *J. Appl. Meteorol.* 12, 1018–1024.
- Hussain, K., Kayani, S.A., 1988. A comparison of the static and flow methods for the detection of ice nuclei. *Atmos. Res.* 22, 125–136.
- Hussain, K., Saunders, C.P.R., 1984. Ice nucleous measurements with a continuous flow chamber. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 110, 75–84.
- IPCC, 2007. The Scientific Basis. A report of Working Group I of the Intergovernmental Panel on Climate Change. In: Solomon, S., Qin, D., Manning, M., Chen, Z., Marquis, M., Averyt, K.B., Tignor, M., Miller, H.L. (Eds.), *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. InCambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Kamphus, M., Ettner-Mahl, M., Drewnick, F., Curtius, J., Mertes, S., Borrmann, S., 2007. Chemical analysis of ambient aerosol particles and ice nuclei in mixed phase clouds by single particle laser ablation mass spectrometry, EGU, Vienna, Austria. *Geophys. Res. Abstr.* 9, 06109.
- Klein, H., 2009. The distribution of atmospheric ice nuclei in European air masses, Ph. D. thesis, University of Frankfurt, Frankfurt, Germany.
- Kohler, F., Mölter, L., Schultz, E., Dietze, V., Schütz, S., Helm, H., 2007. Passive sampler Sigma-2 as an inlet for an optical aerosol spectrometer. *European Aerosol Conference 2007, Salzburg, Abstract T02A036*.
- Kreidenweis, S.M., Chen, Y., Rogers, P.J., DeMott, P.J., 1998. Isolating and identifying atmospheric ice-nucleating aerosols: a new technique. *Atmos. Res.* 46, 263–278.
- Lala, G.G., Justo, J.E., 1972. Numerical estimates of humidity in a membrane filter ice nucleus chamber. *J. Appl. Meteorol.* 11, 674–684.
- Langer, G., Rodgers, J., 1975. An experimental study of the detection of ice nuclei on membrane filters and other substrata. *J. Appl. Meteorol.* 14, 560–570.
- Meyer, D., Gravenhorst, G., 1976. A low pressure diffusion chamber. Report on III Intern. Workshop Ice Nucleus Measurements, Laramie, Wyo, pp. 128–145.
- Roddy, A.F., 1978. Application of filtration theory to ice nucleous measurements. *J. Appl. Meteorol.* 17, 1213–1219.
- Rogers, D.C., 1988. Development of a continuous flow thermal gradient diffusion chamber for ice nucleation studies. *Atmos. Res.* 22, 149–181.
- Rogers, D.C., DeMott, P.J., Kreidenweis, S.M., Chen, Y., 2001. A continuous-flow diffusion chamber for airborne measurements of ice nuclei. *J. Atmos. Ocean. Technol.* 18, 725–741.
- Stein, D., 1984. Untersuchung über die Aktivität atmosphärischer Gefrierkerne in Abhängigkeit von Feuchte und Temperatur, PhD dissertation, Goethe-University, Frankfurt, Germany, 196 pp.
- Stein, D., Georgii, H.-W., 1985. Supersaturation spectra of ice nuclei at different locations in Europe and over the North Atlantic ocean. *J. Rech. Atmos.* 19, 179–184.
- Stetzer, O., Baschek, B., Lüönd, F., Lohmann, U., 2008. The Zurich ice nucleation chamber (ZINC) – a new instrument to investigate atmospheric ice formation. *Aerosol Sci. Technol.* 42, 64–74.
- Stevens, B., 2008. ACPC planning team and participants of the ACPC workshop, 8–10 October 2007, Boulder, CO, USA. *IGAC newsletter*, issue 39, pp. 17–22.
- Stevenson, C.M., 1968. An improved millipore filter technique for measuring the concentrations of freezing nuclei in the atmosphere. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 94, 35–43.

Kapitel 5

Saharan Dust And Ice Nuclei Over Central Europe ATMOSPHERIC CHEMISTRY AND PHYSICS (accepted 13.10.2010)

(Erstautor, Klein et al., 2010)

**(H. Klein, S. Nickovic, W. Haunold, U. Bundke, B. Nillius,
M. Ebert, S. Weinbruch, L. Schuetz, Z. Levin, L. A. Barrie
und H. Bingemer)**

(publizierte Version)

(published Version)

Saharan dust and ice nuclei over Central Europe

H. Klein¹, S. Nickovic², W. Haunold¹, U. Bundke¹, B. Nillius¹, M. Ebert³, S. Weinbruch³, L. Schuetz⁴, Z. Levin⁵, L. A. Barrie², and H. Bingemer¹

¹Institute for Atmospheric and Environmental Sciences, Goethe-University, Frankfurt am Main, Germany

²World Meteorological Organization, Geneva, Switzerland

³Institute for Applied Geosciences, Technical University of Darmstadt, Germany

⁴Institute for Atmospheric Physics, Gutenberg-University, Mainz, Germany

⁵Department of Geophysics, Tel Aviv University, Tel Aviv, Israel

Received: 19 May 2010 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 21 June 2010

Revised: 11 October 2010 – Accepted: 13 October 2010 – Published: 1 November 2010

Abstract. Surface measurements of aerosol and ice nuclei (IN) at a Central European mountain site during an episode of dust transport from the Sahara are presented. Ice nuclei were sampled by electrostatic precipitation on silicon wafers and were analyzed in an isothermal static vapor diffusion chamber. The transport of mineral dust is simulated by the Eulerian regional dust model DREAM. Ice nuclei and mineral dust are significantly correlated, in particular IN number concentration and aerosol surface area. The ice nucleating characteristics of the aerosol as analyzed with respect to temperature and supersaturation are similar during the dust episode than during the course of the year. This suggests that dust may be a main constituent of ice nucleating aerosols in Central Europe.

1 Introduction

In this paper we present surface measurements of atmospheric ice nuclei (IN) in Central Europe together with dust transport modeling of an episode in May 2008, when Saharan dust was transported over a distance of 2500 km northward across the European continent.

Mineral dust aerosols that are suspended in the atmosphere during dust storms are spread over a wide geographic range of the Northern Hemisphere (Prospero, 1999; Kaufmann et al., 2002; Sassen, 2002; Sassen et al., 2003). Dust aerosols directly affect the radiative balance of the earth-atmosphere system through scattering and absorption, changing the atmospheric dynamics and temperature profiles during major

dust storms (Nickovic, 2005; Pérez et al., 2006). Furthermore, their cloud-active fraction modifies the size distribution and the phase of cloud particles by acting as cloud condensation nuclei (CCN) and as ice nuclei. This may in turn affect indirectly the atmospheric radiative balance and thus weather and climate (IPCC, 2007; Zeng et al., 2009), as well as the development of precipitation (Levin and Cotton, 2009). Mineral dust particles are particularly known to act as efficient heterogeneous ice nuclei (Pruppacher and Klett, 1997; Field et al., 2006; Knopf and Koop, 2006; Zimmermann et al., 2008; Niedermeier et al., 2010; Murray et al., 2010). The effect of desert dust on the glaciation of clouds has been reported from lidar backscattering and depolarization measurements. For instance, Sassen (2002) observed that the occurrence of dust from Asian sources over the western United States coincided with unusually warm cirrus layers (about 20 °C warmer than normal). These ice clouds were presumably produced by the dust-induced glaciation of supercooled liquid altocumulus. Similar observations were reported for Saharan dust events over southern Florida (Sassen et al., 2003) and over central Europe (Ansmann et al., 2005). However the coexistence of dust and supercooled droplets does not necessarily result in immediate glaciation. From their measurements in southern Morocco, Ansmann et al. (2008) conclude that ice formation is a strong function of cloud temperature and does not occur above -20 °C. Recently Wiacek et al. (2010) explored the availability of mineral dust particles as ice nuclei for interactions with clouds by analyzing the thermodynamic conditions (temperature and humidity) for the formation of liquid, mixed-phase and ice clouds along of 1.8 million trajectories from the major African and Asian dust source areas over a whole year. Of those trajectories that encountered conditions for cloud formation by far the largest fraction entered conditions of mixed-phase



Correspondence to: H. Klein
(holger.klein@iau.uni-frankfurt.de)

clouds, where mineral dust can initiate glaciation. Space observations (Choi et al., 2010) show that on the planetary scale the fraction of supercooled clouds (at -20°C) and the coincident dust aerosol frequency are negatively correlated, likely due to glaciations by dust.

Although ice nuclei are a necessary ingredient for the glaciation of tropospheric mixed-phase clouds and for the formation of precipitation via the Bergeron-Findeisen-process, their atmospheric concentration is rarely measured. From measurements in Japan Isono et al. (1959) concluded that the deserts of continental Asia are main sources of ice nuclei over Japan, and Hobbs et al. (1971) have shown by measurements at Hawaii, Alaska and Washington State that ice nuclei can be transported across the north Pacific Ocean over thousands of kilometers. Sassen et al. (2003) and DeMott et al. (2003a) report measurements of ice nuclei number concentration, using the Colorado State University's continuous flow diffusion chamber (CFDC). In African dust plumes at 1–4 km altitude over Florida extraordinarily high ice nucleus number concentrations of up to 10^3 L^{-1} at -36.5°C were observed. From 14 years of field studies with the CFDC DeMott et al. (2010) derived a parameterization of the IN number concentration as a function of the number of particles larger than $0.5 \mu\text{m}$ diameter and temperature. Recently Prenni et al. (2009) reported that ice nuclei sampled in the Central Amazon Basin were primarily composed of carbonaceous material of local biogenic origin and of dust from the Sahara.

Bertrand et al. (1973) found that the ice nuclei concentration (measured at -20°C) at Abidjan, Ivory Coast, increased from 10 L^{-1} to around $40\text{--}50 \text{ L}^{-1}$ during advection of Saharan dust particles in Harmattan air masses.

Dust fall and red rains due to long range transport of Saharan dust into Central Europe has been reported in the literature since the 19th century (Ehrenberg, 1849). Ice core samples from non-temperate glaciers in the summits of the Alps show annual layers with reddish-yellow Saharan dust deposits ranging over many centuries into historical times (Tomadin et al., 1996). This transport phenomenon frequently takes place when subtropical air masses are advected from Northern Africa. Over the whole Sahara, a quasi-permanent reservoir of airborne dust can be observed. This reservoir is continuously supplied with dust generated by high surface winds in synoptic-scale extratropical surface depressions, meso-scale density currents related to convection over the mountain regions, small-scale dry convective mixing in the planetary boundary layer, and small-scale disturbances (Schepanski et al 2007; Knippertz et al., 2009).

The long range transport of African dust into Europe is well documented. Measurements made by an Aerosol Lidar and a multi filter rotating shadowband radiometer in the period 1999–2008 at Lampedusa (Di Iorio et al., 2009) show the evolution of the aerosol vertical distribution in the Central Mediterranean Sea. Dust layers are present in the profile in 38% of the cases throughout the year, and in 57% in sum-

mer. The highest altitude of dust layers is observed in late spring, up to 9 km altitude dust is then available for transport into northerly directions under suitable meteorological conditions (Barkan et al., 2004). From systematic observations made by the European Aerosol Research Lidar Network (EARLINET) during the period May 2000 to December 2002 Papayannis et al. (2008) found that the number of dust events was greatest in late spring, summer, and early autumn periods, mainly in southern, southeastern, and south-central Europe. Multiple aerosol dust layers of variable thickness (300–7500 m) were observed. In less frequent cases dust reached northwestern, northern, or northeastern Europe. The systematic occurrence of Saharan dust events is well documented over a period of many years at the high Alpine Jungfraujoch observatory by Collaud Coen et al. (2004), based on time series of scattering and absorption coefficient measurements. A climatology of dust event observations north of the Alps has been established at the WMO global observatory Hohenpeissenberg in southern Germany (Kaminski, 2006). It shows that on average one dust event that produces visible dust deposits or optical phenomena occurs each month throughout the year and even more minor events are recorded. Raman Lidar measurements (Mattis et al., 2008) at Leipzig, Germany, over the past 10 years in the framework of the German Lidar Network (1997–2000) reveal a frequency distribution of Sahara dust events peaking in late spring and during fall, which can be taken as representative for central Europe and also for the Taunus Observatory site.

2 Methods

2.1 Measurements of ice nuclei and of aerosol physical properties

The number concentration of ice nuclei was measured since April 2008 on a regular daily basis at the Taunus Observatory of the Goethe-University on Mt. Kleiner Feldberg, a low mountain range (825 m a.s.l.; $50^{\circ} 13' \text{N}$, $8^{\circ} 27' \text{E}$) in central Germany, approximately 25 km north of the city of Frankfurt am Main. This paper is focussed on ice nucleus observations in May/June 2008 during the strongest event of Saharan dust advection to Germany since five years, based on the record of total suspended particulates at Hohenpeissenberg (H. Flentje, German Meteorological Service DWD, personal communication, 2010). The entire ice nuclei record is presented and analyzed in a separate paper (Klein et al., 2010a).

For the measurement of the ice nuclei number concentration, atmospheric aerosol was first collected on an inert substrate, which was later analyzed in the laboratory for ice nuclei. Samples were collected from a platform on the roof of the Atmospheric Physics Laboratory at hilltop. The air inlet was at 8 m above ground. A main flow of 60 l min^{-1} of ambient air was pumped through a Sigma-2 inlet (VDI 1997) and a 25 mm I.D. \times 4 m length glass tube into the laboratory.

The 50% cutoff diameter of this inlet system as calculated by FLUENT 3-D for 5 m s^{-1} wind speed is $23\text{ }\mu\text{m}$. Ice nuclei samples as well as samples for aerosol physical measurement in the $10\text{ nm} - 20\text{ }\mu\text{m}$ size range were collected isokinetically from the main sample flow, using the pumps of the individual instruments together with appropriate inlet nozzles. The total aerosol number concentration was measured by a TSI 3785 Condensation Particle Counter (CPC). Aerosol size spectra were measured by a TSI 3936 Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) in the $10\text{ nm} - 414\text{ nm}$ diameter range and by a TSI 3321 Aerodynamic Particle Sizer (APS) from $523\text{ nm} - 20\text{ }\mu\text{m}$ diameter. Spectra of particle number concentration were converted from aerodynamic diameter d_a measured by APS to volume equivalent diameter d_e by using the relation $d_a = d_e (\rho_p/\rho_0\chi)^{1/2}$ (Hinds 1998), with $\rho_0 = 1\text{ g cm}^{-3}$, χ = dynamic shape factor, ρ_p = particle density. From these spectra the particle mass spectra and mass concentration were derived. A dynamic shape factor of $\chi = 1.5$ and a particle density of $\rho_p = 2.6\text{ g cm}^{-3}$ were assumed (Tegen and Fung, 1994, Kandler et al., 2007). For comparison to other measurements we consider below from our APS measurements only the mass of particles smaller than $d_{pe} = 10\text{ }\mu\text{m}$, for which we use the term PM_{10} . On average 98.5% of the particle mass is measured below $10\text{ }\mu\text{m}$ d_p .

For the sampling of ice nuclei, 10 l of air were pumped at 21 min^{-1} through an electrostatic precipitator, which deposits aerosol particles on the surface of $47\text{ mm } \varnothing$ silicon wafers (Klein et al., 2010). These samples were then subsequently analyzed at specified temperatures and supersaturations in the isothermal static diffusion chamber FRIDGE (Bundke et al., 2008; Klein et al., 2010) for their ice nuclei number. Each sample was analyzed at the following sequence of temperatures (and supersaturations with respect to ice (RH_{ICE})): $-8\text{ }^\circ\text{C}$ (103%, 105%, 107%); $-13\text{ }^\circ\text{C}$ (106%, 110%, 113%), and $-18\text{ }^\circ\text{C}$ (110%, 115%, 119%). Ice crystals grown on the nuclei by deposition and condensation freezing were viewed by a CCD camera, and counted automatically. The precision derived from multiple sampling and analysis of test aerosol is 9%. The procedure was described in detail by Klein et al. (2010). Samples were usually analyzed within 24 hours. Ice nucleus concentrations reported here will refer to $-18\text{ }^\circ\text{C}$ and $\text{RH}_{\text{ICE}} = 119\%$, unless stated otherwise. After activation and counting of the ice nucleus samples by FRIDGE some of the samples were transferred to an Environmental Scanning Electron Microscope (ESEM) at University of Darmstadt. The elemental composition of individual particles found at those coordinates on the substrate where ice nucleation was observed in the images by FRIDGE, was measured by energy-dispersive X-ray microanalysis (EDX). The unambiguous identification of the analyzed particles as ice nuclei was enabled by a high precision laser engraved coordinate system on the substrates. The positions on the substrates, where ice nucleation was observed by the CCD camera of FRIDGE, can be recovered in the ESEM with a lateral resolution of approximately $5\text{ }\mu\text{m}$.

In addition a variety of meteorological parameters from the weather station of the German Meteorological Service DWD and of air pollution data are also available at the site.

2.2 Modeling the dust transport

The DREAM dust model (Nickovic et al., 2001; Nickovic, 2002) was used to study the temporal and spatial evolution of the dust transport event. It is a regional model designed to simulate and/or predict the atmospheric flow of mineral dust aerosol. It solves the Euler-type equation for dust mass continuity. Eight size bins covering the particle diameters from 0.2 to $20\text{ }\mu\text{m}$ (Table 1) are used to describe the size distribution of dust (Pérez et al., 2006). Model data presented below are the cumulative mass of particle bins 1–7 called here $\text{PM}_{10}^{\text{model}}$. DREAM is driven by the atmospheric NCEP/Eta atmospheric model. The mass concentration equation simulates all major components of the atmospheric dust cycle such as dust emission from sources, vertical and horizontal mixing and advection, and dry and wet deposition. Wind erosion of the soil in the DREAM parameterization scheme is controlled by the type of soil (soil texture), type of vegetation cover, soil moisture content, and surface atmospheric turbulence. Dust emission originates from model computational points recognized as dust productive soils. Such dust source points are defined according to the USGS global 1 km land cover data. Different from most other dust models, DREAM includes a viscous sub-layer between the surface and the lowest model layer (Janjic, 1994) in order to regulate dust emission as a function of the near-surface turbulence intensity. The model parameterizes the dry particle deposition (Georgi, 1986) taking into account dependence of deposition on turbulent and Brownian diffusion, gravitational settlement, and interception and impaction on surface roughness objects. The wet deposition parameterization is based on a simple below-cloud scavenging by precipitation. The simulation experiment in this study was performed by running the model in one-day sequences, in which new initial atmospheric conditions from a global model analysis were updated every day and boundary values of model variables were specified every six hours. Since there are not yet satisfactory three-dimensional dust concentration observations to be assimilated, the dust concentration field was initialized every day using 24-h dust forecasts from a previous day. Only in the “cold start” of the model on 18 May 2008 is the concentration set to zero permitting the model several days before the dust event started to spin-up the concentration. The model resolution is set to 50 km in the horizontal and to 24 layers extending up to approximately 16 km in the vertical and approximately 3 model layers in the planetary boundary layer. The exceptionally large south to north extent of the dust event dictated the use of a rather large model domain ranging from the Saharan sources to the Scandinavian Peninsula.

Table 1. Dust size bins introduced in the model. d_{\min} and d_{\max} are minimum and maximum diameter and d_{eff} is effective diameter for each size bin.

| Bin number | d_{\min} – d_{\max} , μm | d_{eff} , μm |
|------------|---|----------------------------------|
| 1 | 0.2–0.36 | 0.3 |
| 2 | 0.36–0.6 | 0.50 |
| 3 | 0.6–1.2 | 0.90 |
| 4 | 1.2–2 | 1.56 |
| 5 | 2–3.6 | 2.6 |
| 6 | 3.6–6 | 4.4 |
| 7 | 6–12 | 7.6 |
| 8 | 12–20 | 14.2 |

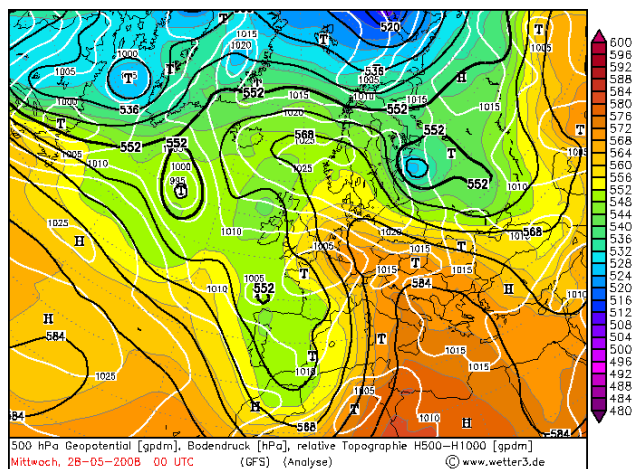


Fig. 1. 500/1000 hPa relative topography and surface pressure on 28 May 2008.

3 Results

3.1 The Sahara dust episode of May 2008

During 22–30 May 2008 the 500 hPa pressure pattern over the Northeast Atlantic (Fig. 1) was dominated by a persistent low at about 1000 km south of Iceland, with a trough directed southeast towards the Iberian Peninsula and Morocco. Along the eastern side of the trough a strong southerly flow from the western and central Sahara across the Mediterranean Sea towards Central Europe prevailed. METEOSAT data indicate that the Western Sahara dust source regions were active during 30–40% of the time in May 2008 (I. Tegen, personal communication, 2009). Strong southerly winds through the entire troposphere (40 m s^{-1} at 600 hPa on 28 May) advected dust layers between 27 and 31 May, as indicated by the back-trajectories calculated by the German Meteorological Service DWD (Fig. 2). For 26–28 May the trajectories point to dust sources in the central northern Sahara (northeastern Algeria, Tunisia, and Libya). The trajectory of 29 May extends to northern Mauritania. This area northwest of Tim-

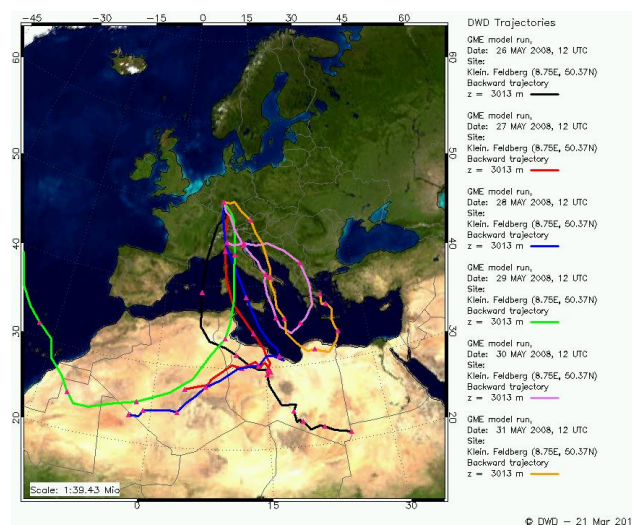


Fig. 2. Backward trajectories arriving at the Taunus Observatory during 26–31 May 2008, calculated by the German Meteorological Service (DWD).

buktu is described as one of the most intense dust sources throughout the year (Prospero et al., 2002). The evolution of the spatial distribution of total column mineral dust during the event as modeled by DREAM (Fig. 3) shows a large scale meandering plume of dust, spreading from the Algerian/Libyan Sahara far northward across Europe to Scandinavia and the Norwegian Sea. The concentration field valid for 12:00 UTC 29 May displayed in the north-south vertical transect (10° E ; 40 – 63° N) shows that the concentration travels at rather high elevations, in some regions reaching 10 km (Fig. 4). One may also notice spatially distributed concentration pulses, that generate temporal pulses visible in the ground-based measurements and model simulation results (see also Fig. 7).

Shallow low pressure systems over the western Mediterranean and Central Europe frequently caused clouds and precipitation along the transport path, but did not prevent the transport of significant amounts of dust across the Alps to central and northern Europe. Surface measurements of PM_{10} of the German Federal and Regional air pollution monitoring networks (Fig. 5a) exceeded the European legal limits for 24 hour exposure ($50 \mu\text{g m}^{-3}$) over wide areas of southern and western Germany during the days of maximum dust advection on 28–30 May (Umweltbundesamt 2008). The surface distribution of $\text{PM}_{10}^{\text{model}}$ over Germany modeled by DREAM (Fig. 5b) closely resembles the measured structures and concentration levels (Fig. 5a), as can be seen for the 24h means of 29 May. The plume axis is running from the southeast to the central west. In the model the maximum is somewhat shifted towards southwest as compared to the measurements. Both the peak levels of around $100 \mu\text{g m}^{-3}$ measured in the south and the 50 – $100 \mu\text{g m}^{-3}$ areas in the central west of the network are well reproduced by the model.

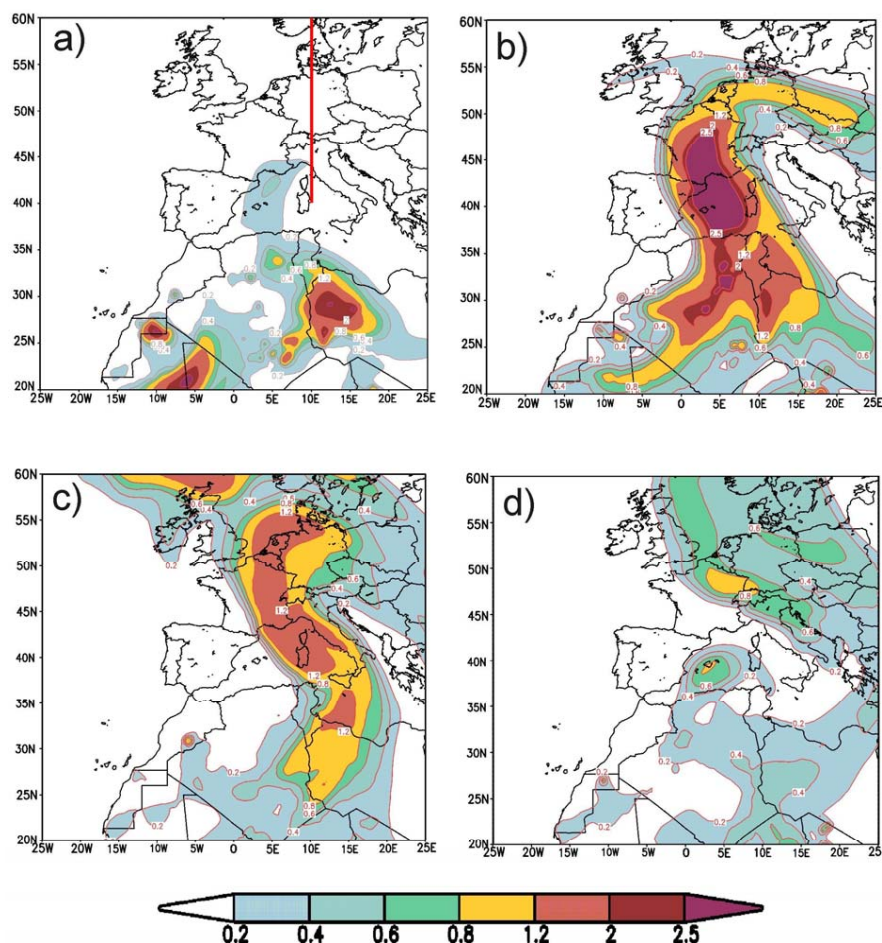


Fig. 3. Total vertical column dust load (vertically integrated concentration in $\mu\text{g}/\text{m}^2$) during the dust event as simulated by the DREAM model for 12 GMT on May 25 (a), 27 (b), 29 (c), and 31 (d). The red line at 10°E in panel (a) indicates the position of the vertical panel along which the concentration is plotted in Fig. 4.

Next, we discuss the event as seen from the Taunus Observatory. Figure 6 compares the mean size distributions of particle number and mass that were measured by APS and SMPS before, during, and after the passage of the dust plume. As expected the dust plume increased predominantly the number and mass of particles that are larger than $0.5\mu\text{m}$ in diameter. The modelled (squares in Fig. 6) and measured size spectra for the dust period compare well. Figure 7 shows the evolution of PM_{10} and $\text{PM}_{10}^{\text{model}}$ at the Taunus Observatory as a function of time. In addition it shows the PM_{10} concentration measured at *Wasserkuppe* (HLUG 2008), an air pollution monitoring station at 950 m altitude on top of a mountain 110 km northeast of the Observatory. Some of the $15\text{--}25\mu\text{g m}^{-3}$ positive offset of PM_{10} against $\text{PM}_{10}^{\text{model}}$ during May 24–26 could be due to pollution (sulfate, nitrate, soot, organics, etc.) that is not covered in the dust model. The mean PM_{10} concentration in this area in May is $20\mu\text{g m}^{-3}$ (HLUG 2008a). Both $\text{PM}_{10}^{\text{model}}$ and PM_{10} start to rise simultaneously in the early morn-

ing hours of 27 May and undergo a series of five individual peaks until 31st of May (labeled #1–5 in Fig. 7). Pulses with approximately the same frequency exists also in the observed AERONET coarse mode aerosol optical depth signal (<http://aeronet.gsfc.nasa.gov>) at Leipzig, 300 km eastward of Taunus Observatory (not shown). While the measured and modeled peaks in all three data sets coincide well in time, the peaks #2 and #3 are overestimated by model, whereas peaks #4 and #5 agree well between measurement and model. We believe that these discrepancies mainly result from subscale phenomena that occur on these days and are not represented in the model, namely thunderstorm development, in particular orographically enforced convection over the Taunus hills. Radar echoes show the development of moderate convective precipitation over the Taunus in the afternoon of 28 (peak #2) and 29 May (peak #3), and the northward passage of two large cumulonimbus clusters over the Taunus ridge at 00:00–05:00 h, and at 19:00–22:00 h local time on 30 May.

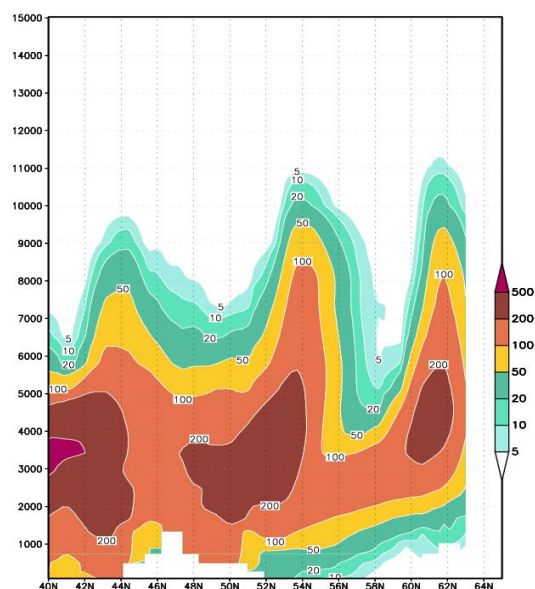


Fig. 4. North-south vertical transect of the mineral dust concentration ($\text{PM}_{10}^{\text{model}}$) at 10°E on 29 May 2008 (12:00 UTC) as modeled by DREAM. The geographical position is marked by the red line in Fig. 3a.

3.2 Ice nuclei observations

The ice nuclei number concentration (at -18°C) at the Taunus Observatory during the dust event (Fig. 8) is significantly higher than our monthly mean value of 40 IN L^{-1} for May 2008 and 2009. Peaks of up to $200\text{--}312 \text{ IN L}^{-1}$ were recorded on 29, 30, and 31 May. Several features point to mineral dust as a dominant contributor to the IN. First, the record of IN (Fig. 8) parallels the records of $\text{PM}_{10}^{\text{model}}$ and of PM_{10} (Fig. 7) in surprisingly many details. $\text{PM}_{10}^{\text{model}}$ shows five distinct maxima, the three largest of which are matched by IN peaks. IN are significantly correlated to the $\text{PM}_{10}^{\text{model}}$ ($R=0.888$, $n=8$), but less to PM_{10} derived from the measurements (Table 2). Most likely the relation between IN and PM_{10} is obscured by the presence of PM_{10} constituents like soot, acids, sea salt and others that have a poor or even adverse effect on the nucleating ability of the aerosol. IN is also highly correlated to the particle mass in each of the size bins between $1.2 \mu\text{m}$ and $12 \mu\text{m}$ (bins 4–7) both for the APS measurements ($R=0.822$, $n=15$), and the model data ($R=0.838$, $n=7$). This size range covers the typical mass median diameters of $1\text{--}3 \mu\text{m}$, which are reported for mineral dust after long range transport (Duce 1995; Prospero 1999, and references therein).

Table 2. Linear Correlation coefficients between ice nuclei number concentration ($\text{#}/\text{l}$) and measured or modelled (spectral) aerosol properties. The $\text{PM}_{10}^{\text{model}}$ data for the correlation analysis were linearly interpolated for the time of aerosol sampling (usually 2/day) within the 3 h time step in the model output. The IN data used for correlation analysis were (a) the means of daily pairs of samples (triangles in the insets of Fig. 8, $n=7$) for correlation to model data, and (b) all individual data points of the period May 24 through June 1 (diamonds, $n=15$) for correlation to measurement data.

| Parameter correlated to IN | Model | Measurement |
|---------------------------------------|-------------------|--------------------|
| PM_{10} | $R=0.888$, $n=7$ | $R=0.609$, $n=15$ |
| Σ particle surface of bins 1–7 | $R=0.919$, $n=7$ | $R=0.370$, $n=15$ |
| Mass in size bins 4–7 | $R=0.838$, $n=7$ | $R=0.822$, $n=15$ |
| Surface, bin 2 of model | $R=0.932$, $n=7$ | |
| Surface, bin 4 of measurement | | $R=0.846$, $n=15$ |

Second, the IN number is significantly correlated to the aerosol surface, in particular in those size regimes that are dominated by mineral dust. Heterogeneous nucleation is viewed as a surface phenomenon, with the number of IN being related to the particle surface area and probability of occurrence of active sites per unit area of the nucleating material (Pruppacher and Klett, 1997; Phillips et al., 2008). High correlations of IN are found to the modelled total particle surface area of bins 1–7 ($R=0.919$, $n=7$, $\alpha<0.01$; Fig. 8), and to surface in each of the size bins. The correlation of IN to the APS-derived particle surface is low for the total surface area of bins 1–7 ($R=0.370$, $n=15$) and the size bins below $1.2 \mu\text{m}$, but higher in the size range of $1.2\text{--}12.0 \mu\text{m}$, with a maximum ($R=0.846$, $n=15$, $\alpha<0.001$) at $1.2\text{--}2 \mu\text{m}$. From our data of 27 May through 1 June 2008, we calculate a mean (\pm standard error of the mean, $n=12$) ratio ξ of activated IN to the surface area of $0.5\text{--}20 \mu\text{m}$ diameter particles (derived from APS measurements) of $1.08 \times 10^9 \pm 3.1 \times 10^8 \text{ IN m}^{-2}$ at 115% relative humidity with respect to ice (RH_{ICE}), and of $3.09 \times 10^8 \pm 9.1 \times 10^7 \text{ IN m}^{-2}$ at 119% RH_{ICE} in FRIDGE. These data fit well into the observed dependence of ξ on RH_{ICE} (Fig. 9), which was obtained from field and laboratory measurements with the Colorado State University's Continuous Flow Diffusion Chamber (DeMott et al., 2003a, b; Archuleta et al., 2005) and recently compiled by Phillips et al. (2008). It is remarkable that this relation persists among data sets obtained with independent techniques and from very different atmospheric environments, such as Saharan dust over Florida (DeMott et al., 2003b) and Europe (this work), and background tropospheric air from Mt. Werner in the western US (DeMott et al., 2003a). This, and the proportionality of IN to aerosol surface add further evidence to support a key assumption of the parameterizations of heterogeneous ice nucleation, which is based on the singularity hypothesis of nucleation (Phillips et al., 2008).

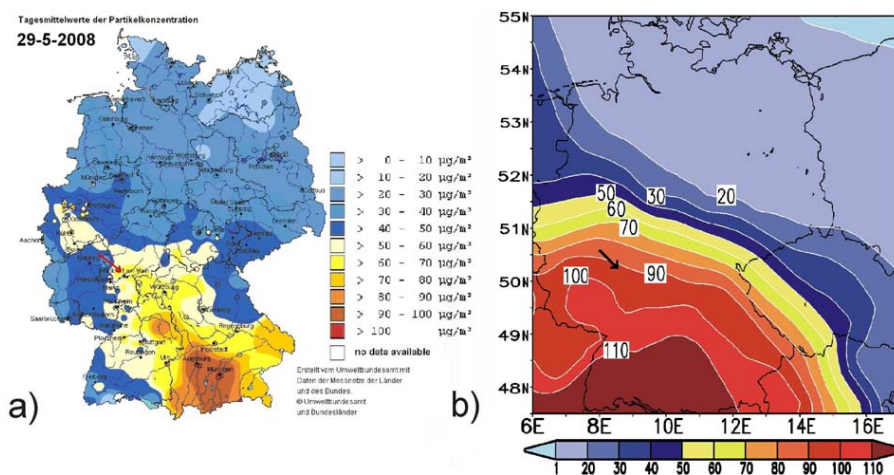


Fig. 5. Diurnal mean surface concentration by mass ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) of aerosol particles with diameter $< 10 \mu\text{m}$ (a) *measured* in Federal and statewide networks on 29 May 2008 in Germany, (© data compiled by the German Federal Environment Agency, Umweltbundesamt); (b) *simulated* by DREAM model (size bins 1–7 in Table 1). (red and black arrows shows measurement-location Kleiner Feldberg).

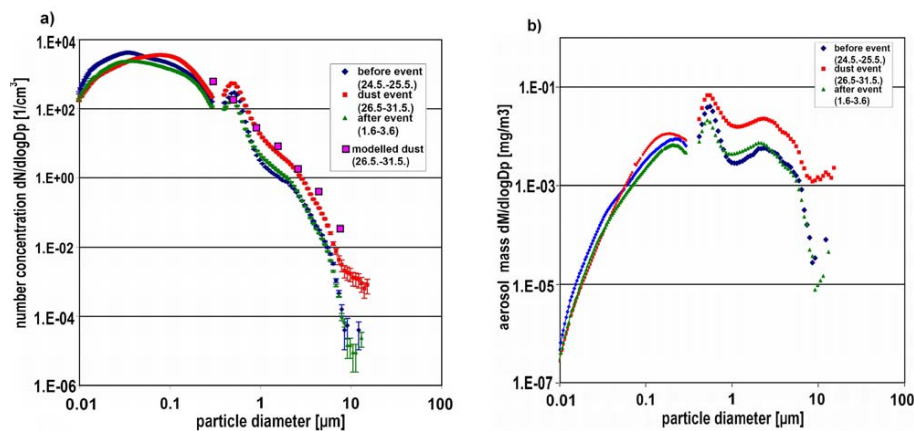


Fig. 6. Aerosol size spectra of number concentration (panel a) and mass concentration (panel b) measured at Taunus Observatory by scanning mobility particle sizer SMPS and aerodynamic particle sizer APS before (blue), during (red), and after (green) the dust event. Pink squares (panel a) denote the aerosol number concentration during the dust event as modelled by DREAM.

Third, the fraction of activated particles (i.e. number concentration of IN/number concentration of particles) during the days of peak dust load (28–30 May) is $4. \pm 1.4 \times 10^{-4}$ (mean \pm std error of mean) based on APS-measurements of particles larger than $0.2 \mu\text{m}$ diameter, and $3.7 \pm 8.3 \times 10^{-4}$ based on modelled concentrations of particles larger than $0.2 \mu\text{m}$ diameter. This lies within the wide range of laboratory data on various Saharan dust aerosols analyzed at approximately the same nucleation conditions (Field et al., 2006; DeMott et al., 2010).

We note very little difference between the IN activation spectra (number of IN as a function of temperature and relative humidity) of the samples taken during the dust episode, and the average spectra from our one year record (Klein, 2010) at the Taunus Observatory (Fig. 10). For intercompar-

ison these data are normalized with respect to the maximum number concentration IN_{MAX} in each spectrum. IN_{MAX} is usually measured at the lowest temperature (-18°C) and highest supersaturation ($\text{RH}_{\text{ICE}} = 119\%$) in FRIDGE. Taking IN_{MAX} in each of the samples as 100%, we find that in the dust samples 20–30% of IN_{MAX} is activated at 97% RH_w , and 15% at 93% RH_w . In the annual mean 30% of IN_{MAX} is activated at 97% RH_w , and 20% at 93% RH_w . If one assumes that the different individual classes of materials (dust, soot, biogenic, ...) that may contribute to the IN throughout the year exhibit appreciably different slopes in their activation spectra in FRIDGE, then the massive presence of dust during the event of June 2008 could be expected to lead to spectra (Fig. 10a) that were different from those at the other times (Fig. 10b) and would thus result in a slope of the linear

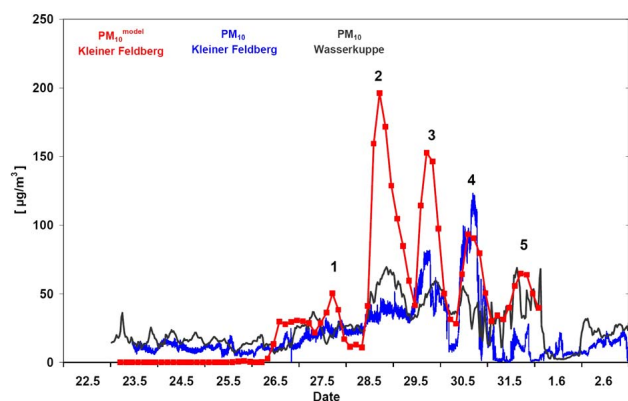


Fig. 7. Measured and modeled PM_{10} mass concentration during the dust event at the Taunus Observatory: blue curve: PM_{10} derived from APS size spectra of $d_p < 10 \mu\text{m}$; red curve: PM_{10} calculated by DREAM model; black curve: PM_{10} measured at mountain weather station Wasserkuppe 110 km northeast of Observatory (HLUG 2008).

regression line between both data sets (Fig. 10c) that deviates from the 1:1 line. From the fact that our regression line lies within the 99.9% confidence bands of the 1:1 line one may conclude that the assumption above is invalid, and that the contribution of the different nucleating materials results in average spectra of the same slope as during the massive dust event, or that the properties and composition of the nucleating materials in both data sets were quite similar, and were likely made up to a large extent by mineral dust. Although the validity of our initial assumption cannot be proven because of unknown composition and properties of the nucleating material, we consider the latter explanation more likely. It is backed by observational data (Klein, 2010) showing that the abundance of IN at the Taunus Observatory throughout 2.5 years of daily measurement is highly correlated with local dust-specific parameters (e.g. extinction by large particles) derived from AERONET and satellite measurements.

Finally, the ESEM analysis of individual aerosol particles that was carried out on the substrates after processing by FRIDGE (see chapter 2) reveals that approximately 90 % of the particles that acted as IN are silicates or Ca-carbonates (Table 3). According to Kandler et al. (2007) higher abundances of carbonates indicate source regions of the dust in the northern Sahara. In addition to the predominant silicate and carbonate particles, a few carbonaceous and metal oxide grains were observed as IN. The high abundance of mineral dust particles among IN observed in the present study is in good agreement with recent findings of Pratt et al. (2009). Based on in situ mass spectrometric measurements in an orographic wave cloud over Wyoming (at an altitude between 7.9 and 8.3 km above sea level) these authors observed an average relative number abundance of 50 % for mineral dust in the fraction of particles acting as IN. However, in con-

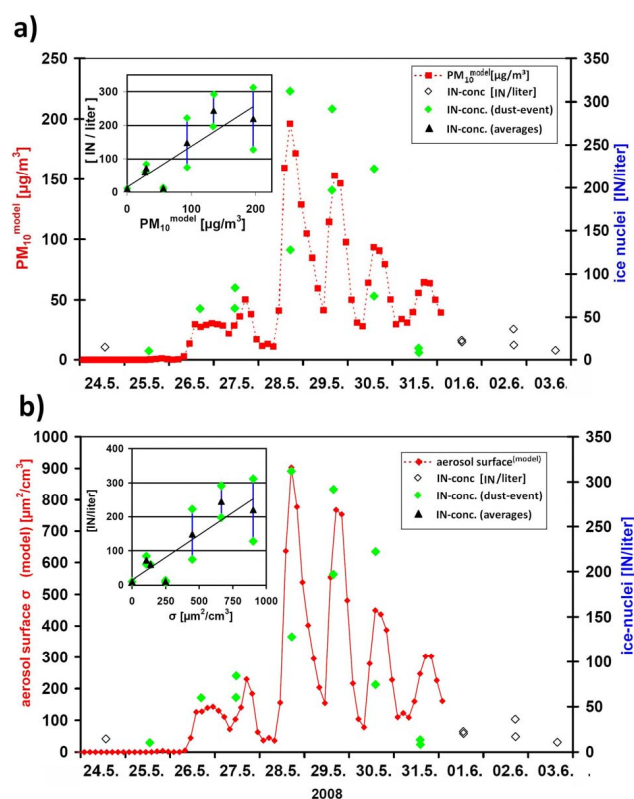


Fig. 8. (a) $\text{PM}_{10}^{\text{model}}$ mass concentration at the Taunus Observatory calculated by the DREAM model and number concentration of ice nuclei (diamonds, #1, 18 samples) measured at Taunus Observatory as a function of time; Inset: Linear regression of IN number concentration during the dust event (triangles) against $\text{PM}_{10}^{\text{model}}$ mass concentration: $y \text{ [IN/l]} = 1.23 \cdot [\text{PM}_{10}^{\text{model}}, \mu\text{g/m}^3] + 14.76$; $R = 0.888$. Triangles ($n = 7$) are means of those individual IN samples (green diamonds, $n = 12$) which were taken within a period of one hour. (b) Same as (a) but for aerosol surface concentration (σ) of model size bins 1–7. Inset: Linear regression of IN number concentration during the dust event (triangles) against $\text{PM}_{10}^{\text{model}}$ surface concentration: $y \text{ [IN/l]} = 0.26 \cdot \sigma \text{ } [\mu\text{m}^2/\text{cm}^3] + 14.80$, $R = 0.919$. Triangles ($n = 7$) are means of individual IN samples (green diamonds, $n = 12$) taken within a period of one hour.

trast to Pratt et al. (2009), we did not find biological particles acting as IN, although this particle group was found to be a major component at our sampling location in the size range of 1–30 μm (Ebert et al., 2004).

4 Summary and conclusion

The concentration of ice nuclei over Europe can be significantly affected by plumes of dust advected from the Sahara across large parts of the continent. Although the dust is transported mainly at several kilometers aloft, the surface concentration of ice nuclei and aerosol are dominated during such situations by dust. The surface concentration of ice

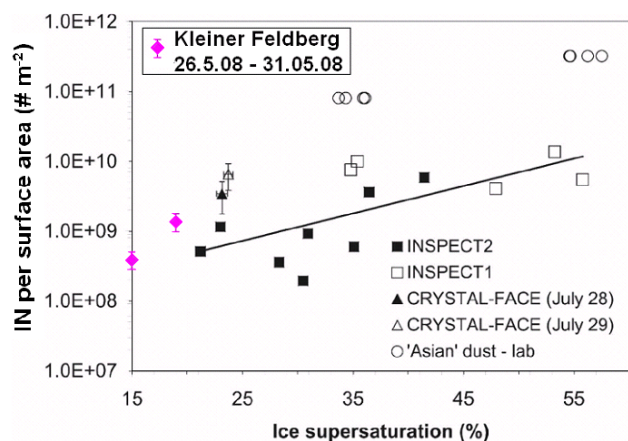


Fig. 9. Number of active ice nuclei per surface area of dust particles as function of supersaturation with respect to ice. Figure taken from Phillips et al. (2008), with data from this work (pink diamonds) added.

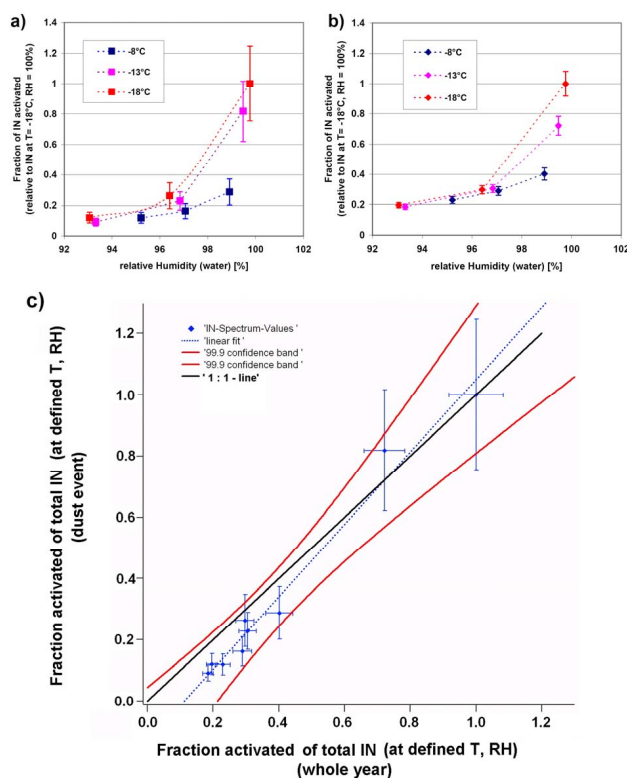


Fig. 10. Panel (a) fractional activation (% of maximum) of IN as function of water saturation during the dust episode. Panel (b) same as in (a) but from 352 samples at the Taunus Observatory during 2008/09. Panel (c): scatter plot of data from (a) vs. data from (b).

nuclei closely resembled the plume structure derived by the DREAM dust transport model. The highest correlation of IN was to aerosol surface area. The fundamental assumption of nucleation schemes, that the number of active IN of a par-

Table 3. Relative number abundance [%] of the different particle groups that acted as IN ($N = 112$).

| particle group | mean value | 95 % confidence interval* |
|----------------|------------|---------------------------|
| silicates | 42.9 | 32.1–54.4 |
| Ca-carbonates | 46.4 | 35.4–57.8 |
| C-rich | 7.1 | 3.1–15.5 |
| metal oxides | 3.6 | 1.1–10.7 |

* confidence intervals were calculated assuming a multinomial distribution.

ticular species of insoluble aerosol is approximately proportional to the total surface area of its aerosol particles (Phillips et al., 2008) is supported. The areal density of activated ice nuclei per aerosol surface as a function of the relative humidity over ice agrees well to the empirical relationship obtained by the Colorado State University's instrument. In the analysis by FRIDGE the ice nucleating characteristics of the aerosol sampled during the dust episode is similar to that of the aerosol during undisturbed conditions. We thus conclude that mineral dust may contribute significantly to the abundance and composition of IN in Central Europe during the whole year. This is supported by the observed correlation of IN to dust-specific parameters in a large data set from this site (Klein, 2010). Thus robust empirical relationships of IN to dust might in the future be used together with dust modelling as a first approach towards the prediction of IN for a given situation.

Acknowledgements. This work was financed by Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) under the Collaborative Research Centre 641 and by the German Israeli Foundation for Scientific Research and Development (GIF). We thank the German Federal Environment Agency (Umweltbundesamt) for the permission to reproduce Fig. 5a, and the German Meteorological Service DWD for supplying the trajectories.

Edited by: D. Knopf

References

- Ansmann, A., Mattis, I., Müller, D., Wandinger, U., Radlach, M., Althausen, D., and Damoah, R.: Ice formation in Saharan dust over central Europe observed with temperature/humidity/aerosol Raman lidar, *J. Geophys. Res.*, 110(D18S12), doi:10.1029/2004JD005000, 2005.
- Ansmann, M., Tesche, M., Althausen, D., Müller, D., Seifert, P., Freudenthaler, V., Heese, B., Wiegner, M., Pisani, G., Knippertz, P., and Dubovik, O.: Influence of Saharan dust on cloud glaciation in southern Morocco during the Saharan Mineral Dust Experiment, *J. Geophys. Res.*, 113, D04210, doi:10.1029/2007JD008785, 2008.
- Archuleta, C. M., DeMott, P. J., and Kreidenweis, S. M.: Ice nucleation by surrogates for atmospheric mineral dust and mineral

- dust/sulfate particles at cirrus temperatures, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2617–2634, doi:10.5194/acp-5-2617-2005, 2005.
- Barkan, J., Kutiel, H., Alpert, P., and Kishcha, P.: Synoptics of dust intrusion days from the African continent into the Atlantic Ocean, *J. Geophys. Res.*, 109, D08201, doi:10.1029/2003JD004416, 2004.
- Bertrand, J., Baudet, J., and Dessens, J.: Seasonal Variations and Frequency Distributions of Ice Nuclei Concentrations at Abidjan, West Africa, *J. Appl. Meteorol. Soc.* 1191–1195, 1973.
- Bundke, U., Nillius, B., Jaenicke, R., Wetter, T., Klein, H., and Bingemer, H.: The Fast Ice Nucleus Chamber FINCH, *Atmos. Res.*, 90, 180–186, doi:10.1016/j.atmosres.2008.02.008, 2008.
- Choi, Y.-S., Lindzen, R. S., Ho, C.-H., and Kim, J.: Space observations of cold-cloud phase change, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 107, 11211–11216, 2010.
- Collaud Coen, M., Weingartner, E., Schaub, D., Hueglin, C., Corrigan, C., Henning, S., et al.: Saharan dust events at the Jungfraujoch: detection by wavelength dependence of the single scattering albedo and first climatology analysis, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 2465–2480, doi:10.5194/acp-4-2465-2004, 2004.
- DeMott, P. J., Sassen, K., Poellot, M. R., Baumgardner, D., Rogers, D. C., Brooks, S. D., Prenni, A. J., and Kreidenweis, S. M.: African dust aerosols as atmospheric ice nuclei, *Geophys. Res. Lett.*, 30(14), 1732, doi:10.1029/2003GL017410, 2003a.
- DeMott, P. J., Cziczo, D. J., Prenni, A. J., Murphy, D. M., Kreidenweis, S. M., Thomson, D. S., Borys, R., and Rogers, D. C.: Measurements of the concentration and composition of nuclei for cirrus formation, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 100, 14655–14660, 2003b.
- DeMott, P. J., Prenni, A. J., Liu, X., Kreidenweis, S. M., Petters, M. D., Twohy, C. H., Richardson, M. S., Eidhammer, T., and Rodgers, D. C.: Predicting global atmospheric ice nuclei distributions and their impacts on climate, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 107, 11217–11222, 2010.
- DeMott, P. J., Möhler, O., Stetzer, O., Vali, G., Levin, Z., Petters, M. D., Murakami, M., Leisner, Th., Bundke, U., Klein, H., Z. Kanji, D. A., Cotton, R., Jones, H., Benz, S., Brinkmann, M., Rzesanke, D., Saathoff, H., Nicolet, M., Saito, A., Nillius, B., Bingemer, H., Abbatt, J. P. D., Ardon, K., Ganor, E., Georgakopoulos, D. G., and Saunders, C.: Resurgence in ice nuclei measurement research, *B. Am. Meteorol. Soc.*, submitted, 2010.
- Di Iorio, T., di Sarra, A., Sferlazzo, D. M., Cacciani, M., Meloni, D., Monteleone, F., Fuà, D., and Fiocco, G.: Seasonal evolution of the tropospheric aerosol vertical profile in the central Mediterranean and role of desert dust, *J. Geophys. Res.*, 114, D02201, doi:10.1029/2008JD010593, 2009.
- Duce, R. A.: Sources, distributions, and fluxes of mineral aerosols and their relationship to climate, edited by: Charlson, R. J. and Heintzenberg, J.: *Aerosol forcing of climate*, Wiley, Chichester, UK, 1995.
- Ebert M., Weinbruch S., Hoffmann P., and Ortner H. M.: The chemical composition and complex refractive index of rural and urban influenced aerosols determined by individual particle analysis, *Atmospheric Environment* 38, 6531–6545, 2004.
- Ehrenberg, C. G.: Passatstaub und Blutregen, *Abhandl. d. Kgl. Preuss. Akad. Wiss. Berlin aus dem Jahre 1847*, 269–460, 1849.
- Field, P. R., Möhler, O., Conolly, P., Krämer, M., Cotton, R., Heymsfield, A. J., Saathoff, H., and Schnaiter, M.: Some ice nucleation characteristics of Asian and Saharan desert dust, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 2991–3006, doi:10.5194/acp-6-2991-2006, 2006.
- Georgi, F.: A particle dry-deposition parameterization scheme for use in tracer transport models, *J. Geophys. Res.*, 91, 9794–9806, 1986.
- Hinds, W. C.: *Aerosol Technology*, John Wiley & Sons Inc., New York, USA, 483 pp., 1998.
- Hobbs, P. V., Bluhm, G. C., and Othake, T.: Transport of ice nuclei over the north pacific ocean, *Tellus*, 23, 28–39, 1971.
- HLUG: Hessisches Landesamt fuer Umwelt und Geologie: data of air pollution monitoring: available online at: <http://www.hlug.de/medien/luft/recherche/recherche.php?station=102>, 2008.
- HLUG: Hessisches Landesamt fuer Umwelt und Geologie: Lufthygienischer Monatsbericht Mai 2008, available online at: http://www.hlug.de/medien/luft/luftmessnetz/dokumente/2008/mb_mai_08.pdf, 2008a.
- Janjic, Z. I.: The Step-mountain Eta Coordinate Model: Further developments of the convection, viscous sublayer and turbulence closure schemes, *Mon. Weather Rev.*, 122, 927–945, 1994.
- IPCC: The Scientific Basis. A report of Working Group I of the Intergovernmental Panel on Climate Change, in: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, edited by: Solomon, S., Qin, D., Manning, M., Chen, Z., Marquis, M., Averyt, K. B., Tignor, M., Miller, H. L., Cambridge University Press, Cambridge, UK and New York, NY, USA, 996 pp., 2007.
- Isono, K., Kombayasi, M., and Ono, A.: The nature and origin of ice nuclei in the atmosphere, *J. Meteorol. Soc. Jpn.*, 37(6), 211–232, 1959.
- Kaminski, U.: Saharan dust observations at Hohenpeissenberg, in: *The German Contribution to the WMO GAW Programme: Upon the 225th Anniversary of GAW Hohenpeissenberg Observatory No. 167. Monitoring and Research of Climate*, edited by: Fricke, W., *Weather Environ. Change*, WMO TD No. 1336, 80–83, 2006.
- Kandler, K., Benker, N., Bundke, U., Cuevas, E., Ebert, M., Knippertz, P., Rodriguez, S., Schütz, L., and Weinbruch, S.: Chemical composition and complex refractive index of Saharan Mineral Dust at Izana, Tenerife (Spain) derived by electron microscopy, *Atmospheric Environment*, 41, 8058–8074, 2007.
- Kaufmann, Y. J., Tanre, D., and Boucher, O.: A satellite view of aerosols in the climate system, *Nature*, 419, 215–223, 2002.
- Klein, H.: Variabilität der Eiskeimkonzentration über Zentraleuropa (Variability of ice nucleus concentration over central Europe), PhD. Dissertation, University of Frankfurt, October 2010.
- Klein, H., Haunold, W., Bundke, U., Nillius, B., Wetter, T., Schallenberg, S. and Bingemer, H.: A new method for sampling of atmospheric ice nuclei with subsequent analysis in a static diffusion chamber, *Atmos. Res.*, 96, 218–224, 2010.
- Klein, H., Bingemer, H., Herrmann, T., Weinbruch, S., Haunold, W., et al.: The seasonal variability of ice nuclei over Central Europe, in preparation, 2010a.
- Knippertz, P., Ansmann, A., Althausen, D., Müller, D., Tesche, M., Bierwirth, E., Dinter, T., Müller, T., Hoyningen-Huene, W., Schepanski, K., Wendisch, M., Heinold, B., Kandler, K., Petzold, A., Schütz, L. and Tegen, I.: Dust mobilization and transport in the northern Sahara during SAMUM 2006 – a meteorological overview. *Tellus B*, 61, 1, 12–31, available online at:

- <http://dx.doi.org/10.1111/j.1600-0889.2008.00380.x>, 2009.
- Knopf, D. A. and Koop, T.: Heterogeneous nucleation of ice on surrogates of mineral dust, *J. Geophys. Res.*, 11, D12201, doi:10.1029/2005JD006804, 2006.
- Levin, Z. and Cotton, W. R. (Eds.): *Aerosol pollution impact on precipitation, A scientific review*, Springer, 386 pp., 2009.
- Mattis, I., Müller, D., Ansmann, A., Wandinger, U., Preißler J., Seifert, P., and Tesche, M.: Ten years of multiwavelength Raman lidar observations of free-tropospheric aerosol layers over central Europe: Geometrical properties and annual cycle, *J. Geophys. Res.*, 113, D20202, doi:10.1029/2007JD009636, 2008.
- Murray, B. J., Wilson, T. W., Broadley, S. L., and Wills, R. H.: Heterogeneous freezing of water droplets containing kaolinite and montmorillonite particles, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 10, 9695–9729, doi:10.5194/acpd-10-9695-2010, 2010.
- Nickovic, S., Kallos, G., Papadopoulos, A., and Kakaliagou, O.: A model for prediction of desert dust cycle in the atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 106, 18113–18129, 2001.
- Nickovic, S.: Dust Aerosol Modeling: Step Toward Integrated Environmental Forecasting, *Eos. Trans. AGU*, 83(47), Fall Meet., A71E-04, 2002.
- Nickovic, S.: Distribution of dust mass over particle sizes: impacts on atmospheric optics, Forth ADEC Workshop – Aeolian Dust Experiment on Climate Impact, 26–28 January, Nagasaki, Japan, 357–360, 2005.
- Niedermeier, D., S. Hartmann, R. A. Shaw, D. Covert, T. F. Mentel, J. Schneider, L. Poulain, P. Reitz, C. Spindler, T. Clauss, A. Kiselev, E. Hallbauer, H. Wex, K. Mildenberger, and Stratmann, F.: Heterogeneous freezing of droplets with immersed mineral dust particles – measurements and parameterization, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 3601–3614, doi:10.5194/acp-10-3601-2010, 2010.
- Papayannis, A., Amiridis, V., Mona, L., Tsaknakis, G., Balis, D., Bosenberg, J., Chaikovski, A., De Tomasi, F., Grigorov, I., Mattis, I., Mitev, V., Muller, D., Nickovic, S., Perez, C., Pietruczuk, A., Pisani, G., Ravetta, F., Rizi, V., Sicard, M., Trickl, T., Wiegner, M., Gerding, M., Mamouri, R. E., D'Amico, G., and Papalardo, G.: Systematic lidar observations of Saharan dust over Europe in the frame of EARLINET (2000–2002), *J. Geophys. Res.*, 113, D10204, doi:10.1029/2007JD009028, 2008.
- Pérez, C., Nickovic, S., Pejanovic, G., Baldasano, J. M., and Özsoy, E.: Interactive dust-radiation modeling: A step to improve weather forecasts, *J. Geophys. Res.*, 111, D16206, doi:10.1029/2005JD006717, 2006.
- Phillips, V. T. J., DeMott, P. J., and Andronache, C.: An empirical parameterization of heterogeneous ice nucleation for multiple chemical species of aerosol, *J. Atmos. Sci.*, 65, 2757–2783, 2008.
- Pratt, K. A., DeMot, P. J., French, J. R., Wang, Z., Westphal, D. L., Heymsfield, A. J., Twohy, C. H., Prenni, A. J., and Prather, K. A.: In situ detection of biological particles in cloud ice-crystals, *Nature Geoscience*, 2, 398–401, 2009.
- Prenni, A. J., Petters, M. D., Kreidenweis, S. M., Heald, C. L., Martin, S. T., Artaxo, P., Garland, R. M., Wollny, A. G., and Pöschl, U.: Relative roles of biogenic emissions and Saharan dust as ice nuclei in the Amazon basin, *Nature Geoscience*, 2, 402–405, 2009.
- Prospero, J. M.: Long-range transport of mineral dust in the global atmosphere: Impact of African dust on the environment of the United States, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 96, 3396–3403, 1999.
- Prospero, J. M., Ginoux, P., Torres, O., Nicholson, S. E., and Gill, T. E.: Environmental characterization of global sources of atmospheric soil dust identified with the NIMBUS 7 Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) absorbing aerosol product, *Rev. Geophys.*, 40, 1002, doi:10.1029/2000RG000095, 2002.
- Pruppacher, H. R. and Klett, J. D.: *Microphysics of Clouds and Precipitation*, Reidel, Dordrecht, The Netherlands, 954 pp., 1997.
- Sassen, K.: Indirect climate forcing over the western US from Asian dust storms, *Geophys. Res. Lett.*, 29(10), 1465, doi:10.1029/2001GL014051, 2002.
- Sassen, K., DeMott, P. J., Prospero, J. M., and Poellot, M. R.: Saharan dust storms and indirect aerosol effects on clouds: CRYSTAL-FACE results, *Geophys. Res. Lett.*, 30(12), 1633, doi:10.1029/2003GL017371, 2003.
- Schepanski, K., Tegen, I., Laurent, B., Heinold, B., and Macke, A.: A new Saharan dust source activation frequency map derived from MSG-SEVIRI IR-channels, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L18803, doi:10.1029/2007GL030168, 2007.
- Tegen, I.: Modeling the mineral dust aerosol cycle in the climate system, *Quart. Sci. Rev.*, 22, 1821–1834, 2003.
- Tegen, I., and Fung I.: Modeling of mineral dust in the atmosphere: sources, transport, and optical thickness, *J. Geophys. Res.*, 99(D11), 22897–22914, 1994.
- Tomadin, L., Wagenbach, D. and Landuzzi, V.: Mineralogy and source of high altitude glacial deposits in the western Alps: clay minerals as Saharan dust tracers. In: Guerzoni, Stefano; Chester, Roy (Hg.): *The impact of desert dust across the Mediterranean*. Dordrecht, Boston, Kluwer Academic Publisher (Environmental science and technology library), 223–232, 1996.
- Umweltbundesamt: Konzentrationen von SO₂, NO₂, O₃ und PM₁₀ aus dem Luftmessnetz des Umweltbundesamtes, Mai 2008, Berlin, 9 pp., 2008.
- VDI (Verein Deutscher Ingenieure): Measurement of particulate precipitations. Sigma-2 sampler, VDI/DIN-Handbuch Reinhaltung der Luft, 4, 1–25, 1997.
- Wiacek, A., Peter, T., and Lohmann, U.: The potential influence of Asian and African mineral dust on ice, mixed-phase and liquid water clouds, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 8649–8667, doi:10.5194/acp-10-8649-2010, 2010.
- Zeng, X., Tao, W., Zhang, M., Hou, A. Y., Xie, S., Lang, S., Li, X., Starr, D. O'C., Li, X., and Simpson, J.: An indirect effect of ice nuclei on atmospheric radiation, *J. Atmos. Sci.*, 66, 41–61, 2009.
- Zimmermann, F., Weinbruch, S., Schütz, L., Hofmann, H., Ebert, M., Kandler, K., and Wörringen, A.: Ice nucleation properties of the most abundant mineral dust phases, *J. Geophys. Res.*, 113, D23204, doi:10.1029/2008JD010655, 2008.

Danksagung

Die vorliegende kumulative Promotionsarbeit ist an dem Institut für Atmosphäre und Umwelt der Goethe Universität Frankfurt am Main unter der wissenschaftlichen Leitung von Professor Ulrich Schmidt entstanden und wäre ohne die gewichtige finanzielle Unterstützung der Deutschen Forschungsgesellschaft (DFG) im Rahmen des Sonderforschungsbereichs (SFB 641) in dieser Form nicht möglich gewesen. Für die Bereitschaft, die Betreuung dieser Arbeit unter dem Umstand einer räumlichen Trennung von Frankfurt fortzuführen, bin ich Professor Ulrich Schmidt sehr dankbar. Professor Joachim Curtius danke ich dafür, dass er eine Weiterführung der Arbeiten auf dem Gebiet der atmosphärischen Eiskeim-Analyse in Frankfurt ermöglicht hat.

Dr. Heinz Bingemer, der das Teilprojekts A2 des ehemaligen SFB 641 in Bezug auf die Frankfurter Gruppe geleitet hat, gilt mein besonderer Dank für die Einführung in das interessante Forschungsgebiet und die Fähigkeit im wissenschaftlichen Dialog auf freundlich kompetente Weise, den Blick auf die entscheidenden Punkte zu lenken. Dankbar bin ich weiterhin für die Kooperation bei den Veröffentlichungen, die stete Präsenz und Gesprächsbereitschaft und die Durchsicht der vorliegenden Arbeit.

Herzlich danken möchte ich auch Werner Haunold, dessen Einsatz für die messtechnischen Weiterentwicklungen und für eine konsequente Durchführung der Probenahme einen Grundpfeiler für das Projekt darstellt.

Des Weiteren geht mein Dank an Robert Röder und seine Mitarbeiter aus der feinmechanischen Werkstatt, für den Aufbau der FRIDGE-Messkammer.

In den Planungsphasen und Testphasen des FRIDGE Instrumentes gab es wesentliche wissenschaftliche Unterstützung und Hinweise von Dr. Ulrich Bundke, Dr. Thomas Wetter und Dr. Björn Nilius. Zusätzlich zur fortdauernden Kooperation im Alltag ist hier auch die gegenseitige Unterstützung bei Messkampagnen zu erwähnen.

Für vielfache freundliche technische Unterstützung möchte ich mich auch bei Robert Sitals bedanken. Für einen Aufbau der FRIDGE Peltier-Steuerung haben Vera Fischer und Dr. Rainer Rossberg von der Elektronikwerkstatt Entwicklungsarbeit geleistet. Danke dafür.

Im Zusammenhang mit Aerosolmessungen am Standort Kleiner Feldberg möchte ich zudem noch ein „Danke Schön“ an Juniorprofessor Boris Bonn aussprechen, der unter anderem die Datensätze der gemessenen Aerosolgrößenspektren und Anzahlkonzentrationen formatiert und einer Qualitätskontrolle unterzogen hat.

Der Arbeitsgruppe der Umweltmineralogie an der Technischen Universität Darmstadt unter der Leitung von Prof. Weinbruch danke ich für die fortwährende Kooperation, insbesondere Dipl. Chem. Thomas Herrmann und Dr. Martin Ebert für die ESEM-Analysen).

Für viele wertvolle Gespräche im Zusammenhang mit dem Eiskeim-Messverfahren und eine wundervolle Gastfreundschaft danke ich unseren Kooperationspartnern Prof. Zev Levin, PhD-student Karin Ardon Dryer and Prof. Eli Ganor von der Tel Aviv University.

Unterstützung erfuhr ich im Rahmen meiner Arbeit zudem von Dr. Slobodan Nickovic, Dr. Ina Tegen, Dr. Ottmar Möhler Dr. Lothar Schütz und Dr. Bernhard Vogel.

Den Mitarbeitern am Institut für Atmosphäre und Umwelt möchte ich für die gute Arbeitsatmosphäre danken. Insbesondere Herrn Dipl.-Met. Stephan Schallenberg und Herrn Dipl.-Met. Frank Kalinka, die im FRIDGE Team mitgearbeitet haben.

Frau Lidzba und Frau Panke danke ich für die stete Hilfsbereitschaft des Sekretariats.

Für die Unterstützung in meinem persönlichen Umfeld möchte ich an dieser Stelle meiner Familie (meiner Mutter Ursula Klein, meinem Bruder Dr. Oliver Klein und seiner Frau Dr. Isabel Klein) danken

Nicht zu Vergessen: Kai Grelke, sowie Frau Dipl. Biol. Ulrike Zechbauer .

Ein besonderer Dank geht an meinen Vater, Herrn Dipl. Math. Siegfried Klein, der als Segelflieger mir ermöglicht hat, Aerosolprobenahmen von einem Motorsegelflugzeug aus durchzuführen und die Entwicklung der vorliegenden Arbeit mit besonderem Interesse verfolgt hat.

Einen lieben Dank an Christina

Lebenslauf

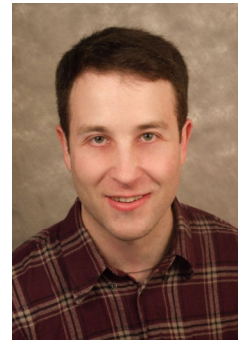
Name: Holger Klein

Geburtsdatum: 24. September 1974

Geburtsort: Neuss am Rhein

Nationalität: Deutsch

Familienstand: Ledig



| | |
|---|--|
| Juni 1994 | Kaiserin-Friedrich-Schule Bad Homburg v.d.H. Allgemeine Hochschulreife |
| 1994-1995 | Zivildienst beim Landes-Wohlfahrts-Verband Hessen (LWV) |
| September 1995 Dezember 1997 | Goethe Universität Frankfurt am Main Studium der Meteorologie (Nebenfächer: Physikalische Chemie, Botanik) Vordiplom Meteorologie |
| 1996 | Softwareentwicklung in Kooperation mit der Hoechst AG, in dem Bereich der klinische Datenerfassung (CLINStar) |
| 2002 - 2004 | Goethe Universität Frankfurt am Main Diplomarbeit am Institut für Meteorologie und Geophysik:: „Untersuchungen zur Homogenität des arktischen stratosphärischen Polarwirbels auf Grundlage von meteorologischen Daten und Messungen luftchemischer Tracer“ Betreuer: Prof. Dr. Ulrich Schmidt Dr. Andreas Engel Auszeichnung der Arbeit mit einem Umweltpreis (Procter & Gamble) |
| Januar 2005 | Goethe Universität Frankfurt am Main Doktorand, bzw. wissenschaftlicher Mitarbeiter Institut für Atmosphäre und Umwelt (IAU) (innerhalb des Sonderforschungsbereiches 641 der DFG „troposphärische Eisphase“, Teilprojekt A2) Schwerpunkte: experimentelle Forschung/Entwicklung |
| April 2010 | Bonner Akademie, Frankfurt am Main Fortbildung zum SUN-Certified Java-Programmer (Plattform 6) |
| 2008 - 2010 | Goethe Universität Frankfurt am Main Doktorand / Mitarbeiter am IAU, Arbeit und Vorbereitung für weitere Publikationen, Anfertigung der kumulativen Dissertation : „Variabilität der Eiskeimkonzentration über Zentraleuropa“ Betreuer: Prof. Dr. Ulrich Schmidt Dr. Heinz Bingemer |

ERKLÄRUNG

Ich erkläre hiermit, dass ich mich bisher keiner Doktorprüfung unterzogen habe.

Frankfurt am Main, den.....
(Unterschrift)

Eidesstattliche Versicherung

Ich erkläre hiermit an Eides Statt, dass ich die vorgelegte Dissertation über

. die Variabilität der Eiskeimkonzentration
über Zentraleuropa.
.....
.....

selbständig angefertigt und mich anderer Hilfsmittel als der in ihr angegebenen nicht bedient habe, insbesondere, dass alle Entlehnungen aus anderen Schriften mit Angabe der betreffenden Schrift gekennzeichnet sind.

Ich versichere, nicht die Hilfe einer kommerziellen Promotionsvermittlung in Anspruch genommen zu haben

Frankfurt am Main, den.....
(Unterschrift)